

专题: 阿秒物理

阿秒物理专题编者按

DOI: [10.7498/aps.71.230101](https://doi.org/10.7498/aps.71.230101)

20世纪六十年代, 激光的发明深刻地影响了我们的世界, 之后, 激光技术的持续发展, 使得人们能够不断地重新认识光与物质相互作用的物理过程. 特别是啁啾脉冲放大技术的发明, 将激光强度提高了几个数量级, 脉宽也被压缩到飞秒尺度, 极大地突破了原来的技术瓶颈, 该技术的发明人 G. Mourou 和 D. Strickland 也因此荣获 2018 年诺贝尔物理学奖. 激光强度的提高直接将光与物质相互作用带到前所未有的超快与高度非线性区域, 并推动了强场原子分子物理研究突飞猛进的发展. 最为明显的例子是 2022 年的沃尔夫奖颁给了 A. L'Huillier, P. Corkum 和 F. Krausz, 以表彰他们在高次谐波和阿秒脉冲研究中的成就.

伴随着超快超强激光技术的不断发展, 强场物理研究已经蓬勃发展了三十多年, 尤其是近二十多年来的研究成果, 让我们能够站在全新的平台上探索超快超强激光脉冲与物质相互作用的动力学过程. 21 世纪初阿秒脉冲光源的出现, 使得我们探测和研究以前无法处理的发生在阿秒时间尺度内的超快过程成为可能, 例如原子多电子激发和电离, 特别是内壳层电子激发和电离的电子关联动力学过程; 分子的激发、电离、解离及辐射过程, 包括分子内的电荷迁移过程; 以及固体材料在超短强激光脉冲下的能带结构变化及谐波辐射过程等复杂超快过程.

为了系统展示阿秒超快动力学过程研究的最新进展, 《物理学报》组织专题, 邀请部分活跃在本领域前沿的相关专家, 从原子、分子、固体与超短强激光脉冲相互作用的理论和实验诸方面, 以不同的视角介绍最新进展, 综述热点研究方向. 在本专题中, 读者将会阅读到丰富的研究成果及一些精彩的综述文章, 例如: 利用阿秒钟概念设计隧穿是否需要时间的实验探测, 并进行了理论讨论; 电离电子在激光场驱动下, 与母离子多次碰撞造成的电离谱精细低能结构的现象和物理机制; 空气激光的产生及应用; 分子的阿秒动力学测量及极性分子高次谐波的产生问题; 原子分子的高里德伯态激发机制和原子激发态对高次谐波产生的贡献、以及如何优化激光光源获得更短阿秒脉冲的理论方案; 固体高次谐波的发展历程等等. 希望通过本专题, 能够促进作者与读者的交流, 分享最新的研究进展与成果, 启发创新思想的火花, 为进一步促进阿秒物理的发展起到积极的作用.

鉴于阿秒科学领域的快速发展以及与其他学科交叉融合的特点, 本专题很难囊括阿秒物理研究最近的重要进展, 所覆盖的阿秒相关领域也不够宽泛, 一些代表性的成果难免遗漏, 不足之处, 敬请读者和同行谅解.

(客座编辑: 魏志义, 王兵兵, 滕浩 中国科学院物理研究所)

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Preface to the special topic: Attosecond physics

DOI: [10.7498/aps.71.230101](https://doi.org/10.7498/aps.71.230101)



阿秒物理专题编者按

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 230101 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.230101

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.230101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

热电材料及应用物理专题编者按

#{suggestTitleEn}

物理学报. 2021, 70(20): 200101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.200101>

面向类脑计算的物理电子学专题编者按

Preface to the special topic: Physical electronics for brain-inspired computing

物理学报. 2022, 71(14): 140101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.140101>

固态电池中的物理问题专题编者按

Preface to the special topic: Physical electronics for brain-inspired computing

物理学报. 2020, 69(22): 220101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.220101>

电介质材料和物理专题编者按

Preface to the special topic: Dielectric materials and physics

物理学报. 2020, 69(12): 120101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.120101>

统计物理和复杂系统专题编者按

Preface to the special topic: Dielectric materials and physics

物理学报. 2020, 69(8): 080101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.080101>

非厄米物理前沿专题编者按

Preface to the special topic: Frontiers in non-Hermitian Physics

物理学报. 2022, 71(13): 130101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.130101>

专题: 阿秒物理

超快强激光场中原子分子的里德伯态激发*

沈星辰 刘洋 陈淇 吕航 徐海峰†

(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

(2022年6月28日收到; 2022年7月24日收到修改稿)

作为超快强激光场与原子分子相互作用的基本过程之一, 里德伯态激发被认为是强场隧穿电离诱导的物理过程的一个重要补充, 受到了研究者的广泛关注. 过去几十年来, 不断涌现了出色的理论和实验工作, 对超快强激光场下里德伯态激发的物理机制形成了更加深入的理解和更为系统的全新认识, 使得该研究课题逐步发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向. 本文系统地综述了超快强激光场中原子分子的里德伯态激发的研究进展, 着重介绍近年来在原子强场里德伯态激发的物理机制、分子强场里德伯态激发中的结构效应以及基于强场里德伯态激发的中性粒子加速和相干辐射研究等方面的研究工作, 在此基础上, 总结和展望了强场激发研究方向未来的发展趋势. 希望本文能够为强场激发相关研究提供较为详尽的文献综述, 为进一步开展深入的研究工作提供参考.

关键词: 超快强激光场, 里德伯态激发, 隧穿电离, 俘获

PACS: 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.80.Rv, 34.80.Gs

DOI: 10.7498/aps.71.20221258

1 引言

啁啾脉冲放大技术 (chirped pulse amplification, CPA) 的出现^[1,2], 极大地提升了超快脉冲激光的电场强度, 催生了强场物理科学研究领域的诞生. Donna Strickland 和 Gérard Mourou 也因 CPA 技术的发明获得了 2018 年诺贝尔物理学奖. 在强场物理通常使用的光场强度下 (10^{13} — 10^{16} W/cm² @ 800 nm), 原子分子与激光相互作用会产生很多高度非线性的物理过程, 低阶微扰理论已不适用于处理激光与原子分子的相互作用. 电离是这些非线性物理过程的基础, 通过 Keldysh 定义的绝热参数可以区分强场电离的机制^[3], $\gamma = \sqrt{I_P/(2U_P)}$, 其中 I_P 是原子电离势, $U_P = e^2 E^2/(4m\omega^2)$ 是有质动力势, e 表示电子的电荷, E 表示激光电场强度, m 表示电子质量, ω 表示激光频率. 当原子处于高频低光强的激光场中, 强场电离以多光子电离机制 (multi-

photon ionization, MPI) 占主导, 此时 $\gamma \gg 1$; 而在低频高光强的激光场中, 则隧穿电离 (tunneling ionization, TI) 机制占主导, 此时 $\gamma \ll 1$. 许多强场物理过程与隧穿电离后的电子在激光电场和分子库仑势共同作用下的运动密切相关. 得益于 1993 年 Corkum^[4] 和 Schafer 等^[5] 提出的三步重碰撞过程, 人们对原子强场物理过程有了非常清晰的物理图像: 束缚电子经由激光场和库仑势共同形成的势垒隧穿后, 在交变的激光电场作用下, 首先加速远离原子核, 随着激光电场方向的改变, 隧穿电子有一定的概率返回到母体原子核, 并与原子核发生相互作用, 产生不同的非线性物理过程. 如果返回电子与原子核发生弹性散射, 形成高能光电子, 这一现象称为高阶阈上电离 (high-order above-threshold ionization, HATI); 如果返回电子与母体离子复合, 产生高能光子, 这一现象称为高次谐波发射 (high-order harmonic generation, HHG); 如果返回电子通过碰撞将能量传递给其他电子并

* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0307700) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174148, 12074144, 11874179) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xuhf@jlu.edu.cn

使其电离, 则发生非序列双/多电离 (non-sequential double/multiple ionization, NSDI/NSMI). 过去几十年内, 这些隧穿电离诱导的重碰撞物理^[6]过程一直备受关注, 同时极大地推动了诸如阿秒物理^[7-9]、分子轨道成像^[10-12]、超快电子衍射^[13-15]和新型超短极紫外光源^[16-18]等新兴研究领域的发展.

随着研究的不断深入, 人们发现隧穿电离的出射电子还能诱导一些其他新奇的物理现象, 其中包括本文将要论述的强场里德伯态激发 (Rydberg state excitation, RSE). 2006年, Wang等^[19]通过数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 在理论上预言了隧穿电离的电子有一定的概率被母原子核重新俘获到高里德伯态, 形成高激发态的中性原子. 2008年, Nubbemeyer等^[20]利用飞行时间质谱直接检测到强场产生的高激发态中性原子, 首次从实验上证实了在隧穿电离区域也有大量的中性里德伯 He 原子存活下来, 提出了强场受挫隧穿电离 (frustrated tunneling ionization, FTI) 机制来描述强场 RSE 过程, 并认为这是三步重碰撞模型的一个重要补充. 随后的大量研究工作表明, 强场 RSE 过程是一个非常普遍的强场物理现象. 在 800 nm 强激光场中, He 原子 RSE 产率约为总电离的 10%, 而 Ar 和 Xe 原子的激发概率可达到电离的约 15% 和 30%^[21], 甚至超过了相应原子的 NSDI 的概率. 除了中性惰性气体体系, 分子解离或库仑爆炸的碎片离子亦可以俘获隧穿电子, 形成高激发态的碎片原子^[22-24]; 而分子本身通过强场 RSE 过程也可产生处于高激发态的中性分子^[25-27]; 甚至是高价离子亦可以通过再俘获电子而产生激发态离子 (即: 受挫的双电离或多电离, frustrated double/multiple ionization)^[28]. 正因如此, 在过去的十余年里, 强场 RSE 过程作为一种隧穿电离诱导的物理过程的一个重要补充, 被越来越多的研究者关注. 实验上, 研究者利用直接探测高能原子^[29,30]、脉冲静电场场致电离高里德伯态^[26,31]、冷靶反冲离子动量成像谱 (cold target recoil ion momentum spectroscopy, COLTRIMS) 符合测量^[27,32]、以及激发态的辐射光谱^[33]等手段, 研究不同体系的强场 RSE 过程, 探究了所产生的激发态原子或分子的产率和量子态分布, 以及其随着强激光场参数的变化趋势. 理论上, 人们发展了用于处理强场 RSE 过程的半经典模型 (semiclassical model)^[34-37]、全经典系综^[38,39]、TDSE 数值模

拟^[40-42]、以及基于强场近似 (strong field approximation, SFA) 的量子模型^[43]等方法, 结合实验观测结果, 探讨了强场 RSE 的物理机制, 分析了其中的量子效应和轨道结构效应. 研究发现, 强激光场中存活的中性激发态原子与其他强场物理现象, 包括域上电离 (above-threshold ionization, ATI) 中的极低能和近零能电子特征结构^[44-46]、阈值下 HHG 产生^[47,48]等现象都有着密切的关系. 通过中性里德伯态原子在激光强度梯度下受到的有质动力 (ponderomotive force), 强场 RSE 过程可以实现对中性原子加速, 加速度可达到地球重力加速度的 10^{14} 倍^[49]. 理论研究预期原子通过强场 RSE 可制备布居可观的高激发态, 实现不同能级间的粒子数布居反转, 有望产生一定增益的波长可覆盖太赫兹到极紫外的激光辐射^[50,51]. 最近, 研究者已经观测到基于强场 RSE 产生的相干极紫外辐射, 被认为是一种除 HHG 之外新的有应用潜质的超短 XUV 光源^[33].

纵观过去十余年的文献报道, 强场 RSE 已经发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向, 不仅具有重要的科学研究意义, 而且未来可能具有潜在的应用前景. 对于超快强激光场相关的物理过程, 诸如重碰撞物理^[6,52]包括 HHG^[35,48]、HATI^[53,54]、NSDI^[55,56]等, 以及在此基础上发展出来的超快电子成像^[57,58]和阿秒物理^[8,59,60]等研究方向, 目前已有许多非常出色的综述文献报道, 详细总结了近些年这些强场物理方向的研究进展. 但对于强场 RSE 过程而言, 目前仅有 2016 年 Zimmermann 和 Eichmann^[61]概述了 FTI 机制及中性粒子加速方面的研究进展. 事实上, 最近几年来, 围绕强场 RSE 物理过程, 不断涌现大量理论和实验工作, 对其物理机制有了更加深入的理解, 对相关的物理过程形成了更为系统的全新认识. 因此, 本文将系统地总结近年来在强场 RSE 及其相关物理过程的研究进展, 首先简要介绍强场里德伯态激发过程的实验测量和理论模拟方法, 然后在第 3 节中着重讨论了强场中原子里德伯态激发的物理机制, 第 4 节中概述里德伯态量子态分布的研究, 第 5 节介绍分子强场里德伯态激发的结构效应, 第 6 节介绍基于强场 RSE 的中性粒子加速和相干辐射的研究, 最后在第 7 节中展望了该研究方向未来的发展趋势.

2 强场 RSE 过程的实验测量和理论模拟方法

与基态相比,原子分子高里德伯态具有较为特殊的性质,例如,电子运动轨道周期长、电子轨道半径大以及电子束缚能低等,其研究已有很悠久的历史.针对弱光场作用下的频域测量范畴,研究者发展了各种高精度的谱学方法,用于探测里德伯态的光谱、碰撞及电子态间的相互作用^[62,63].针对强场 RSE 过程,目前实验测量里德伯态的方法主要有中性激发态直接测量、脉冲静电场场致电离、以及通过动量符合实现通道分辨测量等.图 1 中汇总了目前研究强场 RSE 的实验测量方法的示意图^[21,29,64].对于直接测量中性激发态方法,强激光场作用后产生的高激发态原子随着气束自由飞行到探测器,由于高激发态原子具有很高的内能,能够直接被微通道板 (microchannel plate detector, MCP) 检测,实现对强场 RSE 产率的测量 (图 1(a))^[29].这种直接测量中性激发态的方法,需要激发态的寿命足够长以到达 MCP 探测器 (飞行时间取决于原子束的速度和光作用区到探测器的距离,通常在几十微秒或更长的时间量级).由于原子一般具有长寿命的亚稳态,这种方法非常适用于研究原子强场 RSE 过程.但该方法不具有质量分辨,且分子激发态寿命一般比较短,因此不适于测量分子的强场 RSE 过程.脉冲静电场场致电离方法利用了高里德伯态易于被外加电场下电离的特性,结合飞行时间质谱 (time of flight mass spectrometer, TOF-MS),使用延迟的静电场电离高里德伯态原子分子并测量电离后的离子信号,这也是研究强场 RSE 过程行之有效的一种探测手段 (图 1(b))^[21].荷电粒子检测灵敏度高且质谱具有很好的质量分辨,因此可以用来研究强激光场中原子以及分子母体或碎片 RSE 过程,但受限于通常 TOF-MS 装置中使用的静电场强度,实验仅能测量一定主量子数 n 范围的 RSE 布居.最近,人们利用 COLTRIMS (图 1(c)) 实现了对强场 RSE 过程的检测^[64].通过 COLTRIMS 中固有的微小静电场 (一般为 10 V/cm),研究者检测到强场中可形成布居在极高 n (n 可达 100 以上) 的里德伯态^[27,65,66],此外,通过分析不同粒子的动量符合, COLTRIMS 方法还可以研究解离过程中的碎片 RSE 产生^[67-73].

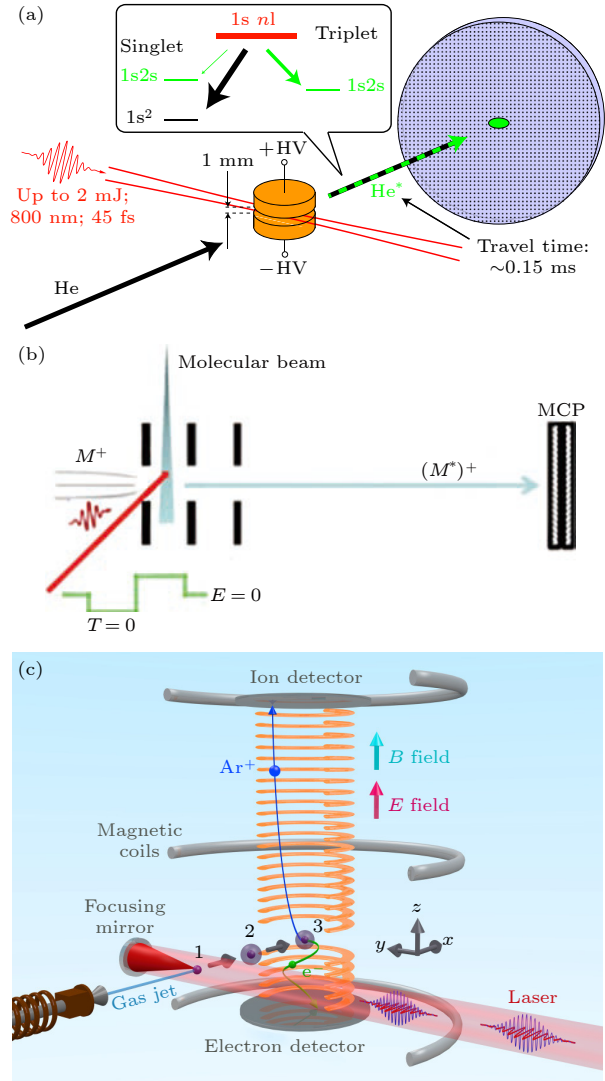


图 1 强场 RSE 的实验测量方法示意图 (a) 中性激发态直接测量方法^[29]; (b) 脉冲静电场场致电离方法^[21]; (c) COLTRIMS^[64]方法

Fig. 1. Schematic diagrams of experimental measurements of strong field RSE: (a) Direct measurement of neutral excited states^[29]; (b) pulsed electric field ionization^[21]; (c) COLTRIMS^[64].

理论上,在隧穿电离图像的基础上,研究者发展了半经典两步模型 (semiclassical two-step model) 研究强场 RSE 过程,隧穿电离由绝热的 Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 模型^[74]描述,隧穿后的电子在激光场与库仑势共同作用下的运动通过经典轨迹处理,通过统计激光脉冲结束后末态电子能量为负值的轨迹从而计算电子被俘获到里德伯态的概率.半经典模型很好地重现了一些实验观测现象,如 RSE 产率对激光椭圆度的依赖^[35,37]、量子态的分布^[29,75]等,印证了 FTI 物理机制中隧穿-俘获的过程.数值求解 TDSE 方法也被用于研究强场

RSE 过程. 这种方法通常基于单活性电子模型势, 将激光作用结束后的波函数投影到里德伯态上, 得到 RSE 的产率 [41,42,76,77]. 最近, Hu 等 [43] 在强场近似 (strong field approximation, SFA) 的基础上建立了一种全量子模型处理强场 RSE 过程的方法, 给出了相干俘获这一强场 RSE 过程的全新物理图像. 关于强场 RSE 的产生机制及其中的量子效应, 我们将在下面章节中详细叙述.

3 原子强场 RSE 的物理机制

原子强场 RSE 的产生机制一直存在很大的争议, 这主要体现在多光子和隧穿两种图像之间的争议, 如图 2 所示. 一些研究者认为强场 RSE 的产生类似于 Freeman 共振或伴随 AC-Stark 移动的多光子共振激发 (图 2(a)), 而 FTI 机制认为 RSE 过程是电子隧穿电离后, 在激光场与库仑势共同作用下被俘获到里德伯态 (图 2(b)). 下面围绕不同激光参数下原子 RSE 过程的研究, 阐述两种图像对强场 RSE 物理机制的理解.

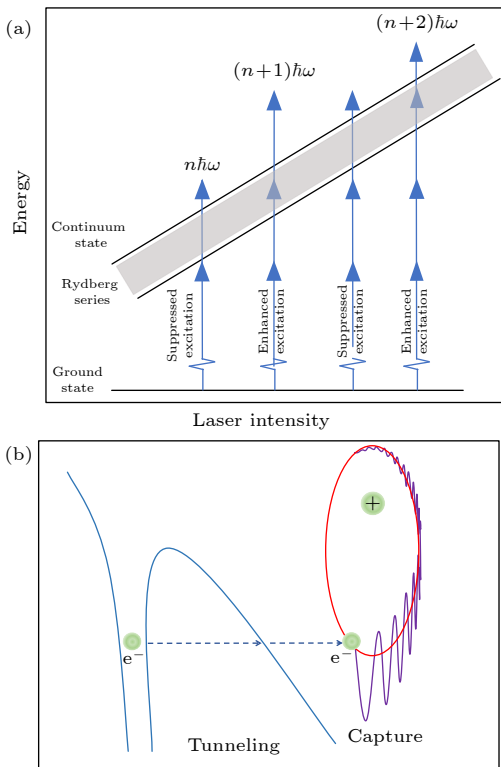


图 2 强场 RSE 过程示意图 (a) 多光子图像; (b) 隧穿后俘获图像的

Fig. 2. Schematic diagrams of multiphoton image (a) and tunneling plus capture image (b) of strong field RSE process.

Nubbemeyer 等 [20] 实验观测到中性 He 原子激发态 (He^*) 产率强烈依赖于激光椭圆率 (图 3(a)), 这是重碰撞物理过程 (如 HATI, NSDI, HHG 等) 的一个特征现象. 同时他们研究发现 He 原子强场 RSE 最可几分布的主量子态在 $n = 8$ 附近, 对应的里德伯轨道半径与重碰撞预期的 quiver 半径 ($r_{\text{max}} = F/\omega^2$, 其中 F 为激光电场强度, ω 为激光频率) 相符合. 据此, 他们提出强场 RSE 的 FTI 机制, 并指出其是重碰撞相关的物理过程的主要依据. 随后, Landsman 等 [35] 基于忽略库仑势的强场近似理论方法, 给出了在重碰撞框架下的 He^* 产率对激光椭圆率的数值关系, 这种依赖关系与 HHG 类似, 且很好地重现了 Nubbemeyer 等 [20] 对 He^* 的实验观测结果. 同时 Landsman 等将 He 原子 RSE 和 HHG 结果进行了对比, 指出其形成的不同之处在于隧穿电离的时刻不同, 导致隧穿电子返回时的动能不同, 而隧穿后电子的动力学是类似的, 因此导致相近的对激光椭圆率的依赖关系. 但同时他们也指出, 产生 RSE 的隧穿电子并不需要返回到隧穿出口附近 [35] (里德伯态的半径正比于 n^2 , 隧穿电子被俘获的位置事实上已远大于隧穿出口). 从这点来说, 强场 RSE 对激光椭圆率的依赖应该远不如 HHG 及 NSDI 等重碰撞物理过程强烈 (后者需要隧穿电子返回到母核附近, 因此椭圆光场带来的漂移动量会导致返回概率更为急剧地降低), 这显然与 He 原子的结果是不符合的 (He 的强场 RSE 与 HHG 对激光椭圆率有相同的依赖关系 [35]). Huang 等 [37] 研究发现只有当隧穿后的电子分布在某一特定的窗口 (称之为存活窗口), 才可以被俘获到里德伯态, 存活窗口由隧穿电子的初始场相位和横向速度决定, 不同的原子具有不同的存活窗口. 他们计算了不同电离限 (I_p) 原子的 RSE 对激光椭圆率依赖的半高全宽 (图 3(b)), 指出对于 I_p 较小的原子, 考虑库仑势的 SFA 模型计算得到 RSE 产率对激光椭圆率依赖的结果更接近半经典计算的结果, 表明库仑势在强场 RSE 过程中有重要作用 [37]. 在 Nubbemeyer 等对 He 原子 RSE 研究的基础上, Zhao 等 [31] 进一步测量了不同原子 (He, Ar, Kr) 的 RSE 产率对激光椭圆率的依赖关系, 并与 NSDI 进行了对比研究. 对于不同原子, NSDI 对激光椭圆率的依赖很好地符合重碰撞物理模型的预期, 而 Ar 和 Kr 原子的强场 RSE 产率则展现比 NSDI 更弱的对激光椭圆率的依赖关系 (图 3(c)), 表明强场 RSE 不能

用隧穿+重碰撞的模型来理解. 他们使用三维半经典模型计算了不同原子隧穿后的光电子动能随激

光椭圆率的变化分布, 分析指出, RSE 产率强烈依赖激光椭圆率的物理机制是能够被库仑势俘获的低能电子在椭圆光场中产率降低导致的, 与 HHG 及 NSDI 等重碰撞物理过程是不同的 [31].

在数值求解 TDSE 的工作中, 研究者注意到原子强场 RSE 的产率随激光强度的变化呈现振荡结构 [40–42,75,77]. 图 4(a) 展现了 TDSE 数值模拟 H 原子在 800 nm 强激光场下电离和 RSE 随激光强度的变化关系, 可以看到两者产率随光强增加出现明显的位相相反的振荡结构 [77]. Volkova 等 [40] 认为, 造成这种振荡结构的原因是 AC-Stack 效应引起的能级移动和 Freeman 共振. 随后, Li 等 [41,77] 也使用 TDSE 求解 H 原子的光电子能谱和 RSE 布居, 指出原子 RSE 和低能 ATI 谱峰的移动都来自于多光子电离过程中通道关闭 (channel-closing) 效应, 周期振荡峰的间隔与通道关闭效应的预期是一致的 (根据 $n\hbar\omega = U_p + I_p$, 800 nm 光场中 n 光子和 $(n+1)$ 光子通道对应的光强间隔约为 26 TW/cm²), 而中性里德伯态原子在强激光场中有很高的存活率归因于这些里德伯态具有较大的角动量. 实验上, Zimmermann 等 [42] 观测到 400 nm 强激光场中 Ar 和 Ne 原子里德伯态激发产率存在阶梯状的跃变, 对应的光强为特定光子数电离的 channel-closing 对应的激光光强, 但在 800 nm 光场中他们没有观测到类似现象. 最近研究者通过更为精确地控制激光光强和检测条件, 以有效降低光强平均效应的影响, 观测到了 800 nm 强激光场中原子 RSE 产率随光强变化的振荡结构 [30,43]. Xu 等 [30] 比较了 400 和 800 nm 强激光场中 Ar 原子 RSE 的测量结果, 发现低光强 400 nm 光场产生的 Ar⁺和 Ar*产率呈同步增强现象, 而在高光强 400 nm 光场及 800 nm 光场中, Ar*和 Ar⁺产率呈现出明显的相位相反的振荡现象 (图 4(c)), 指出原子 RSE 的机制在不同光场下由多光子的图像转变为隧穿图像. Chetty 等 [78] 实验测量了不同脉宽下这种原子 RSE产率随光强变化的振荡结构, 发现在少周期光场下, 特定光强下的增强效果明显降低, 他们认为这很大程度上归因于考虑了 AC-Stark 效应的共振态有效布居的选择性, 而不是电离通道的关闭. 此外, 数值求解 TDSE [75] 和最近的实验测量结果 [79], 都发现了在更长波长 (1800 nm) 下, 不同光强下原子 RSE 产率随光强变化趋势存在周期约为 50 TW/cm² 的振荡结构 (图 4(d)), 这显然与

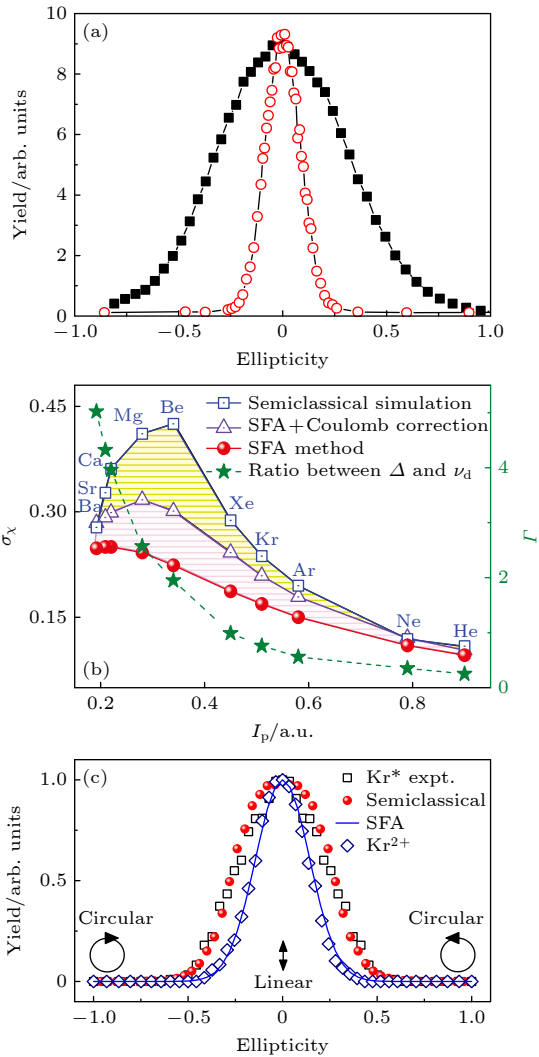


图 3 (a) 800 nm 飞秒强激光场中电离 (He⁺, 黑色方框) 和 RSE (He*, 红色圆圈) 产率随激光椭圆率的变化关系 [20]; (b) 强激光场中不同 I_p 的原子里德伯态产率对激光椭圆率依赖的半高全宽 (σ_x) 和相位窗口的宽度与横向速度的比值 (Δ/v_d , 绿色星形) [37]; (c) 800 nm 飞秒强激光场 Kr 原子 RSE (Kr*, 黑色方框) 及 NSDI (Kr²⁺, 蓝色菱形) 产率随激光椭圆率的变化关系. 红色圆圈为三维半经典计算结果, 蓝色实线为忽略库仑势的 SFA 模型计算结果 [31]

Fig. 3. (a) Dependence of ionization (He⁺, black squares) and RSE (He*, red circles) yields on the ellipticity of the 800 nm strong laser fields [20]; (b) dependence of Rydberg state yields of atoms with different I_p on the ellipticity of strong laser fields (σ_x) and the ratio between the width of phase window and the drift velocity v_d for different atoms (Δ/v_d , green star) [37]; (c) yields of Kr RSE (Kr*, black squares) and NSDI (Kr²⁺, blue diamonds) on the ellipticity of the strong 800 nm laser fields. Red circles are the results from 3D semiclassical calculations. Blue solid lines are the SFA model analytical results without considering the Coulomb potential [31].

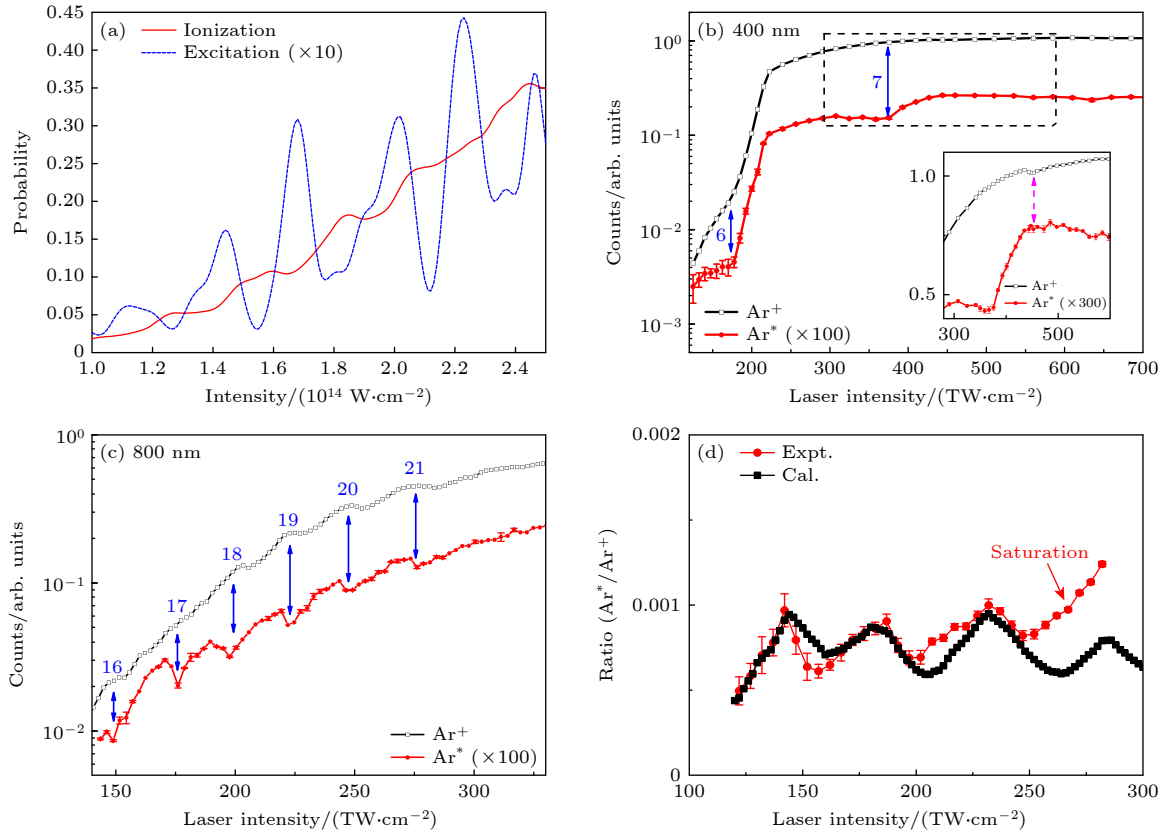


图 4 (a) H 原子在 800 nm 激光场下电离率 (红色实线) 和激发率 (蓝色虚线) 随激光光强变化的 TDSE 数值模拟结果^[77]; (b), (c) Ar 原子在 400 和 800 nm 强激光场下实验测量的电离率和激发率随激光光强变化^[30]; (d) Ar 原子在 1800 nm 激光场下激发率与电离率比值的测量和计算结果^[79]

Fig. 4. (a) Dependence of H ionization (red solid lines) and RSE (blue dotted lines) yields on the intensity of 800 nm strong laser fields based on TDSE numerical simulations^[77]; (b), (c) experimentally measured Ar ionization and RSE yields in 400 and 800 nm strong laser fields^[30]; (d) measured and calculated yield ratios of Ar ionization and RSE in 1800 nm strong laser fields^[79].

通道关闭效应的预测是不一致的 (按照 channel-closing 的预期, 1800 nm 波长下对应的周期应该是 2.2 TW/cm², 远小于图 3(d) 中的 50 TW/cm² 周期)^[75].

如上所述, 无论是多光子共振还是半经典 FTI 图像, 都不能完全解释实验观测的所有现象, 多光子共振图像不能解释图 3 中展现的原子 RSE 产率对激光椭圆率的强烈依赖, 而半经典 FTI 图像则不能解释图 4 中给出的 RSE 产率随激光强度变化的振荡结构. 如果仔细观察图 4(a) 中 TDSE 数值计算的结果, 可以看到原子 RSE 产率的峰值是高低交替出现的, 这种调制的特征是以上两种物理机制所不能解释的. 2019 年, Hu 等^[43] 在 SFA 的基础上建立了一个处理强场 RSE 的全量子模型, 给出了强场原子 RSE 产生的量子图像, 如图 5 所示. 按照该量子图像, 电子被电离到连续态后在激光场中运动, 一些自由电子被不同的轨道上的里德伯态俘获, 不同光学周期电离的电子轨道间的干涉导致

了里德伯态产率随光强变化的振荡结构, 同时俘获概率强烈依赖于里德伯态的空间位置和奇偶对称性, 从而导致了振荡峰值结构的调制. 量子模型的计算结果重现了实验观测的 He* 的主量子数 n 的分布和 Xe 原子 RSE 产率对激光强度的依赖关系^[43]. 最近, Liu 等^[79] 利用量子模型成功地解释了 1800 nm 激光场中 Ar 原子 RSE 产率随光强变化的周期为 50 TW/cm² 的振荡结构, 指出其来源于不同返回次数的电子轨道之间的干涉.

从上述研究中可以看出, 强场 RSE 虽然是隧穿电离电子诱导的一种物理过程, 但电子并不需要返回母核发生“硬碰”, 而是在激光场作用下低能电子被离子核库仑势俘获, 形成高里德伯态. 虽然基于多光子共振的机制可以定性解释 800 nm 强激光场中 RSE 产率随光强变化而呈现的振荡结构, 但振荡峰强度的调制以及长波长下不符合“channel-closing”预期的振荡频率, 则是由于不同电子轨道间的干涉导致的. 从这点来说, 强场 RSE 既不是

与 HATI, HHG, NSDI 等类似的“隧穿+重碰撞”过程,也不是纯粹的多光子共振机制.基于量子轨道模型提出的图像(图 5),即伴随阈上电离的相干俘获过程,更好地诠释了原子强场 RSE 过程的物理机制^[43].

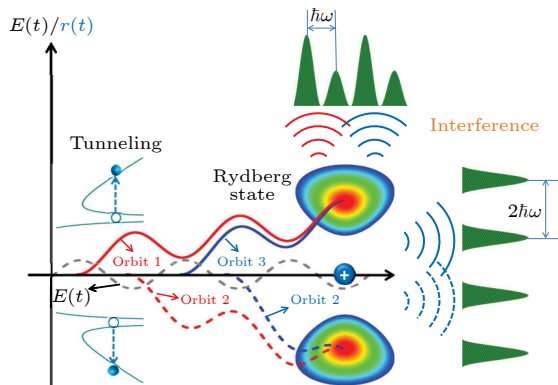


图 5 强场 RSE 的量子图像.在激光不同半周期内电离的隧穿电子被俘获到特定的里德伯态,不同轨道的干涉产生随激光强度变化的振荡峰结构^[43]

Fig. 5. Quantum picture of strong field RSE process. The tunneling electrons ionized in different optical half cycles of the laser pulse are captured into a certain Rydberg state, and the interference of different orbits leads to the intensity dependence of peak structures^[43].

4 原子强场 RSE 的量子态分布

强场 RSE 过程形成的里德伯态的量子态分布最近几年也引起了研究者的关注,这部分工作主要集中在理论研究上. Eichmann 等^[80]计算得到了 800 nm 强激光场中 He* 的主量子数 n 分布,同时,他们通过计算主量子数为 n 的里德伯态的激发概率和存活概率,指出 $n > 15$ 的态几乎不受强场的影响,并保持稳定.他们还研究了不同激光参数下 Ar* 的主量子数 n 的分布,发现在某一光强范围内的高里德伯态产率随激光强度增加而向低主量子数 n 移动^[42]. Li 等^[41,77]通过 TDSE 数值模拟了 H 原子的电子能谱和激发态布居,计算表明里德伯态在强激光场中能够大量存活是因为强场 RSE 产生的里德伯态具有较大的角动量,从而导致里德伯态原子被光再次电离的概率非常低.他们还提出了用通道关闭效应来解释不同激光强度下在高 n 激发态和低 n 激发态之间的分布中出现的振荡结构^[41,77]. Piraux 等^[75]通过数值求解 TDSE 计算了俘获概率随脉冲持续时间和激光波长的变化关系,对于长波长 1800 nm 强激光场中,他们发现在振荡的

最大值和最小值处,角动量分布向高值的偏移. Venzke 等^[81]发现强场 RSE 的角动量态布居的宇称符合多光子共振吸收的选择定则.

实验上,由于高里德伯量子态能量间隔小,实现量子态分辨的测量是一项有挑战性的工作. 2015 年, Zimmermann 等^[29]利用静电场电离结合中性粒子探测方法,通过调节静电场的电场强度,首次给出了强激光场中产生的里德伯态主量子数 n 的相对布居,如图 6(a) 所示, He 原子强场 RSE 主要分布在 $n = 8-10$ 范围,这与 Nubbemeyer 等^[20]理论的预测是一致的.从 Eichmann 等的结果可以看出,俘获到 $n > 30$ 以上里德伯态的概率几乎可以忽略.有趣的是,研究者利用 COLTRIMS 中的微小静电场电离(电场强度在 10 V/cm 量级),也观测到了明显的强场 RSE 信号,按照这样的静电场强度估计,所检测的里德伯态甚至可以达到 $n > 100$ 或更高^[27,65,66].有研究认为这种极高 n 的里德伯态布居与电子能谱中的极低能结构和近零能结构相关^[44-46].最近, Zhao 等^[66]提出了一种提取强激光场下产生的里德伯态主量子数的布居 (principal quantum number distribution, PQND) 的方法,实验上通过改变 COLTRIMS 中的直流电场强度,改变对有效时间间隔有重要贡献的原子里德伯态的主量子数范围,提取主量子数 $n \geq 100$ 极高里德伯激发态的信号,利用半经典公式拟合存活里德伯原子的直流场电离产率随时间的变化,获得了与直流电场强度密切相关的激发态的主量子数的布居,定性重现了实验中测量获得的结果(图 6(b)).

5 分子强场 RSE 的结构效应

相比于原子,分子具有更复杂的电子轨道结构和额外的核运动自由度,强场分子物理过程呈现更多丰富的新奇现象,揭示这些现象背后的物理机制以及蕴含的分子结构效应,已成为近年来强场分子物理研究领域的前沿和热点课题.对于分子强场 RSE 而言,研究者首先是在分子的解离性电离或库仑爆炸过程中,观测到产生的高激发态中性碎片原子通道. Manschwetus 等^[22]观测到 800 nm 飞秒强激光场作用 H₂ 分子可产生激发态 H* 碎片,其动能分布与离子碎片 H⁺ 相近.他们结合经典轨迹分析,指出 H* 碎片是由分子库仑爆炸或解离产生的离子碎片 H⁺ 俘获电子形成的(图 7).研究者在

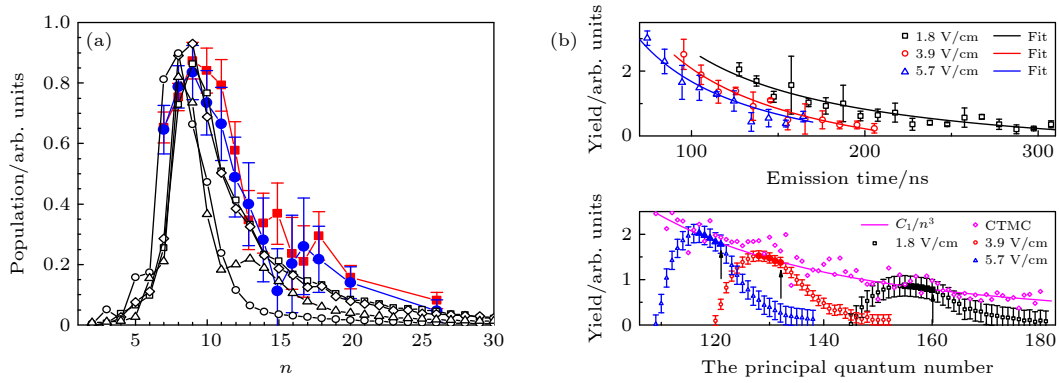


图 6 (a) 800 nm 强激光场中 He* 的主量子数 n 的布居. 蓝色圆圈和红色方框分别代表 1.8×10^{15} W/cm² 和 2.9×10^{15} W/cm² 下实验测量结果. 空心菱形和空心方框分别代表 1×10^{15} W/cm² 和 1.4×10^{15} W/cm² 下半经典理论计算结果. 空心圆圈和空心三角形分别代表 1.8×10^{15} W/cm² 和 2.9×10^{15} W/cm² 下量子单电子近似理论结果^[29]; (b) 上图为不同直流电场下 Ar* 产率随时间的变化关系, 下图为提取的量子态分布. 黑色方框、红色圆圈和蓝色三角分别表示 COLTRIMS 中直流电场为 1.8, 3.9 和 5.7 V/cm 下的实验测量结果数据和分别在 1.8, 3.9 和 5.7 V/cm 处提取的主量子数的布居, 实线曲线是拟合结果以及在 800 nm 激光场下提取的 Ar* 的主量子数的布居, 品红色菱形表示半经典模型计算的主量子数的布居结果^[66].

Fig. 6. (a) Measured n -distributions in 800 nm strong laser fields for a laser intensity 1.8×10^{15} W/cm² (blue circles) and 2.9×10^{15} W/cm² (red squares). Semiclassical calculations at a laser intensity 1×10^{15} W/cm² (open diamonds) and 1.4×10^{15} W/cm² (open squares), and quantum mechanical SAE calculations at 1.8×10^{15} W/cm² (open circles) and 2.9×10^{15} W/cm² (open triangles)^[29]. (b) upper panel: time dependence of the yields of Ar* at a series of dc electric fields. Lower panel: extracted PQNDs for the data presented in the above figure^[66]. The black squares, red circles, and blue triangles indicate the experimental data and the extracted PQND at 1.8, 3.9, and 5.7 V/cm, respectively. The fitting results and the extracted PQNDs of Ar* in 800 nm strong laser fields are depicted by solid curves. The magenta diamonds in the lower panel indicate the calculated PQND by the semiclassical model^[66].

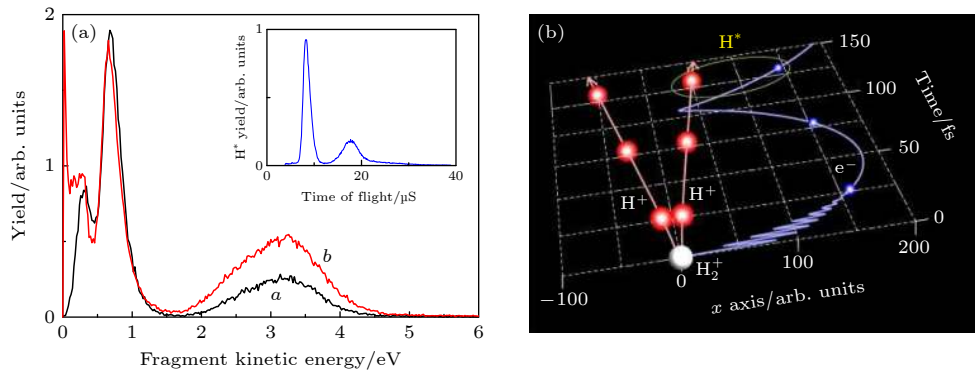


图 7 (a) 中性激发态 H* 碎片 (黑色曲线) 和离子碎片 H⁺ (红色曲线) 的动能分布^[22]; (b) 分子碎片的里德伯态激发机制的示意图^[22]
Fig. 7. (a) Kinetic energy distribution of excited neutral fragments He* (red curve) and ionic fragments H⁺ (black curve)^[22]; (b) schematic picture of Rydberg state excitation mechanism of molecular fragments^[22].

其他分子体系中, 如 N₂^[23], D₂^[24,68], CO^[73], O₂^[71] 及二聚体^[28,69,82] 等, 也观测到类似的激发态原子碎片通道. 有研究者称这种现象为受挫的解离性电离 (frustrated dissociative ionization)^[83]. Zhang 等^[68] 利用 COLTRIMS 技术测量了 D₂ 分子强场解离性双电离产生的 (D⁺, D⁺) 和 (D⁺, D^{*}) 通道的光电子-光离子符合光谱, 同时利用泵浦-探测方法研究了不同通道的动能释放的时间演化, 指出中性激发态碎片 D^{*} 的产生是一个序列过程, 即 $D_2 + n\hbar\omega \rightarrow D_2^+ + e_1 + m\hbar\omega \rightarrow D^+ + D^+ + e_2 \rightarrow D^+ + D^* + e$, 也就是说第二步电离出射电子更易于在分子的解离性电

离中被离子碎片俘获而形成里德伯态. Ma 等^[71] 指出 O₂ 分子不同的束缚态和排斥态影响解离和俘获的通道, 强激光场中产生的激发态碎片存在解离性里德伯激发和解离性单电离再俘获过程. 相比于同核双原子分子, 人们在异核双原子分子乃至多原子分子体系与强激光场的相互作用中, 亦观测到中性激发态碎片, 而其产生机制更为复杂. Zhang 等^[73] 研究了在强激光场作用于 CO 分子形成的中性里德伯碎片 C* 和 O* (图 8(a)), 发现解离产生的不同原子离子俘获电子的概率不同, 电离电子更容易被 C⁺ 俘获形成 C*, 而被 O⁺ 俘获形成 O* 的概率相

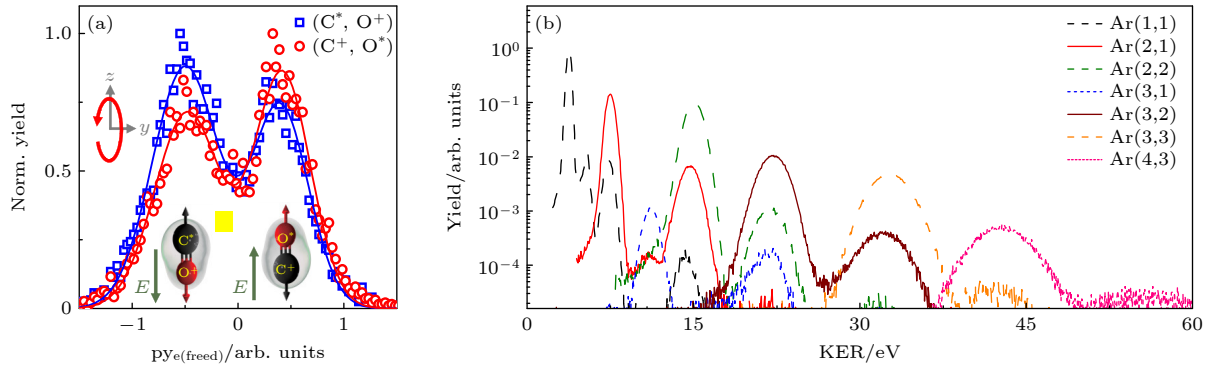


图 8 (a) 强激光场中 CO 分子形成的原子激发态碎片产率依赖于激光场方向和分子取向^[73]; (b) Ar₂ 二聚体高阶库仑爆炸通道的平动能分布^[28]

Fig. 8. (a) The yields of atomic excited fragments formed by CO molecules in strong laser fields depend on the direction of laser field and molecular orientation^[73]; (b) kinetic energy release distribution of multiple ionization-induced Coulomb explosion channels of the Ar dimer^[28].

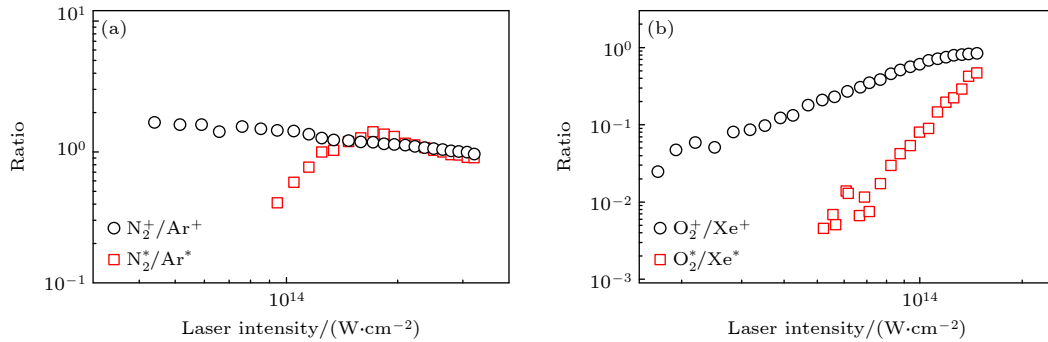


图 9 实验测量的 800 nm 强激光场下 N₂ vs. Ar 和 O₂ vs. Xe 的单电离 (黑色圆圈) 以及里德伯态激发 (红色方框) 的比值随激光强度的变化关系^[26]

Fig. 9. Experimentally measured yield ratios of N₂ vs. Ar and O₂ vs. Xe for both single ionization and RSE as a function of intensity of 800 nm strong laser fields^[26].

对较小, 这可能与分子的取向及电子轨道结构相关. 类似的电离电子被选择性俘获的现象在二聚体 N₂Ar 分子的研究中也被观测到, 二聚体的结构在其中起到了重要作用^[69,82]. 除了中性原子激发态的碎片, 研究者在二聚体 Ar₂ 的研究中, 通过对于不同通道的平动能分布, 证实了更高价态的分子在库仑爆炸过程中存在多次俘获电子的现象, 从而产生原子离子的高里德伯态激发 (图 8(b))^[28].

相比而言, 中性分子本身在强激光场中 RSE 过程的研究仍不充分. 2016 年, Lv 等^[26] 利用质量分辨的脉冲电场电离结合飞行时间质谱技术, 首次在实验上证实了超快强激光场中, 分子存在类似于原子的强场 RSE 现象. 他们对比研究了 N₂/O₂ 分子和其电离限相近的 Ar/Xe 原子的强场 RSE 过程, 以揭示强场 RSE 的分子结构效应. 研究发现了具有不同电子轨道结构的 N₂ 和 O₂ 分子的强场 RSE 产率与相应的原子体系相比, 存在明显不同的抑制

现象, N₂ 表现得与原子类似, 而 O₂ 分子 RSE 则明显低于 Xe 原子 (图 9), 这与分子强场电离的抑制现象是类似的. TDSE 的数值计算重现了实验观测的结果, 分析指出, 不同结构的分子电子出射方向和角分布不同, 导致被离子核俘获产生里德伯激发态的概率不同^[26]. 同时理论预言了分子强场 RSE 的产率随光强变化呈现于原子类似的振荡结构, 其中蕴含的量子效应仍有待进一步研究. 最近, Sun 等^[27] 利用 COLTRIMS 技术也观测到强激光场中高激发态的 O₂^{*} 和 N₂^{*}, 并与相应原子的结果进行了比较 (图 10). 有意思的是, Sun 等^[27] 发现 O₂^{*} 产率比 Xe^{*} 高几个数量级, 这与 Lu 等^[26] 的研究结果是相反的. 需要指出的是, COLTRIMS 技术可测量的是极高 n 值的里德伯态 (在文献^[27] 中 $n > 74$). 上述两个工作的矛盾表明分子结构效应在不同主量子数的里德伯态产生中起到的作用是截然不同的, 因此其背后的物理机制也可能是不同的^[27].

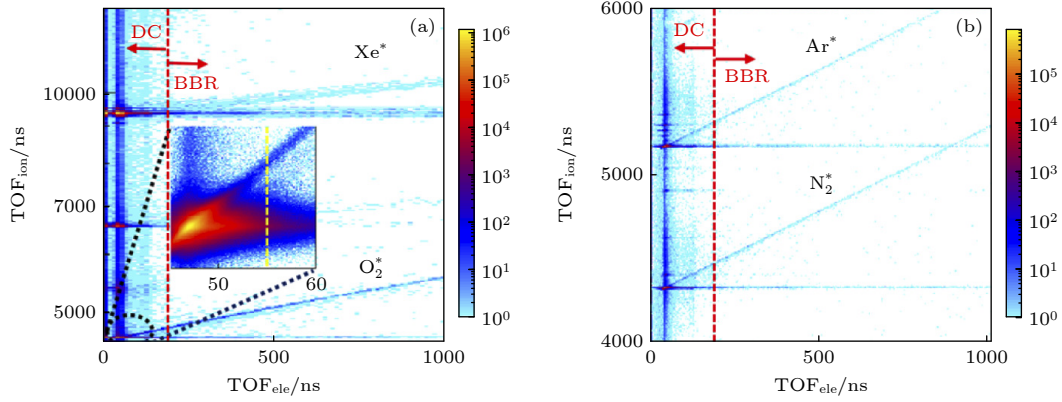


图 10 在线偏光下 O_2/Xe (光强为 $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$) 和 N_2/Ar (光强为 $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$) 的光电子-光离子符合光谱. 红色虚线表示由于原子分子激发态的黑体辐射导致光电离和直流电场电离之间的分界线^[27]

Fig. 10. Photoelectron-photoion-coincidence spectra obtained in linearly polarized femtosecond laser pulses for O_2/Xe (at the intensity of $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$) and for N_2/Ar (at the intensity of $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$). The red dashed curves in both figures indicate the separation between DC electric field ionization and photon ionization due to black body radiation of the Rydberg atoms and molecules^[27].

分子强场物理研究中, 多轨道、多中心和多电子效应一直是研究者关注的重点, 在分子强场电离/多电离、HATI, HHG 等都有大量的研究工作^[52,84–92]. 最近的一些理论工作也开始关注这些效应在分子强场 RSE 的重要作用. Shu 等^[93] 通过 TDSE 数值计算和量子轨道模型研究了具有相近电离能但轨道对称性不同 ($1\pi_g$ 和 $1\pi_u$) 的模型分子的强场 RSE 过程, 发现随着激光脉冲周期的增加, 里德伯态概率随激光强度变化的振荡结构变得明显, 归因于长脉冲光场的不同光周期出射电子波包的干涉效应更强. 他们发现对于分子不同的初始态 ($1\pi_g$ 和 $1\pi_u$), 具有相同宇称的里德伯态出现的概率与激光强度的变化趋势是反相的, 提出了分子强场 RSE 中不同对称性的轨道导致的双中心干涉效应^[93]. Liu 等^[94] 进一步研究了在强激光场中双中心干涉对不同初态 ($1s\sigma_g$ 和 $1s\sigma_u$) 分子的电离和里德伯态激发过程的影响. 与 $1s\sigma_g$ 态相比, 初态为 $1s\sigma_u$ 的分子在低强度下电离的抑制要比里德伯态激发的抑制更明显, 他们指出相干俘获机制结合双中心干涉, 可以很好地解释不同初态的分子强场 RSE 过程的差异. 这些理论研究工作展现了强场 RSE 过程的不同分子结构、轨道以及多中心效应的影响, 接下来, 需要进一步开展更精密的实验测量, 同时研究强场 RSE 与其他强场物理过程的关联, 以深入理解复杂的分子体系与超快强激光场相互作用的物理机制.

6 基于强场 RSE 的中性粒子加速和相干辐射

作为一种新的强场物理现象, 原子分子强场

RSE 过程可以诱导产生一些有趣和重要的物理过程, 其中有代表性的是中性粒子加速^[39,49,61,95–99] 和相干辐射产生^[33,50,51,100–102]. 2009 年, Eichmann 等^[49] 最早提出了基于原子强场 RSE 的中性粒子加速思想. 他们在实验上利用峰值强度约为 10^{16} W/cm^2 的线偏光作用于中性 He 原子, 观测到俘获产生的里德伯激发态 He 原子在激光焦平面 ($z = 0$) 中呈非常大的径向分布, 这是由于激光脉冲过程中的径向偏转力造成的, 在可达到的脉冲持续时间范围内, 偏转与作用在原子上的有质动力成正比, 这种作用力产生的加速度可以达到地球重力加速度的 10^{14} 倍^[49]. 他们后续工作进一步表明强激光场中有质动力在激光光束的径向方向优先作用于原子使其加速, 这归因于聚焦的激光束沿径向方向的强度梯度要比沿传播方向强得多^[61]. Chen 等^[99] 模拟了激发态中性原子在激光场中运动, 计算了中性原子与激光脉冲相互作用后的空间分布, 并分析了粒子空间分布与有质动力分布的关系, 结果展现了有质动力与激光强度分布是决定中性里德伯原子最终空间分布的两个重要因素. 基于强场 RSE 的中性原子加速的思想, 研究者探究了对中性原子进行选择操控 (推或拉) 的可能方法^[95–98].

强场 RSE 过程可以产生有效布居在高激发态的原子, 这种情况下可出现与低激发态能级间的粒子数反转, 从而有可能用于放大, 产生波长可覆盖太赫兹、红外、可见乃至紫外和极紫外范围的增益辐射^[51]. Bredtmann 等^[50] 利用 *ab-initio* 方法模拟了氢原子在高次谐波产生的瞬态吸收过程, 指出原

子通过受控隧穿电离布居激发态的同时, 迅速耗散初始基态, 从而产生粒子数反转, 可以造成极紫外辐射的放大. Matthews 等^[100]利用整形激光证实能通过强场 RSE 过程形成的粒子数反转放大种子光. 2018 年, Yun 等^[33]在 He 原子 HHG 光谱的研究中, 观测到新的来自强场 RSE 过程产生的里德伯激发态通过自由感应衰变 (free induced decay, FID) 发出极紫外相干辐射, 其产率依赖于激光椭圆偏率和载波包络相位, 而发散角略大于 HHG^[33,101]. Ortman 等^[102]研究表明增加脉冲持续时间会耗散较低位里德伯态, 从而大大地降低这种极紫外相干辐射的产率. 这种基于强激光场中原子 RSE 过程可以产生增益放大或相干辐射, 为新型超快相干光源的发展提供了一种新的思路.

7 结论与展望

综上所述, 原子分子的强场里德伯态激发作为隧穿电离诱导的一个重要物理过程, 已经逐步发展成为强场原子分子物理领域的一个重要研究方向, 近十余年来受到研究者的广泛关注. 人们已经发展了中性/荷电粒子测量、符合测量、光谱测量等实验技术, 以及半经典、经典和量子等理论模拟方法, 对不同强激光场下不同原子分子体系的里德伯态激发过程进行了深入的研究. 从多光子共振激发到隧穿后再俘获, 再到相干俘获的量子图像, 人们对于原子强场 RSE 产生机制的认识不断深入. 对于分子体系而言, 母体分子及其解离的碎片都可以俘获电子而产生相应的里德伯态分子或原子, 而分子轨道结构对俘获几率有非常重要的影响. 此外, 在中性粒子加速和相干辐射方面的研究工作, 展现了强场 RSE 物理过程潜在的应用价值.

回顾近年来相关的研究工作, 可以看到研究者对强场 RSE 过程的理解不断深入, 提升了对超快强激光场与原子分子相互作用的认识, 也推动了强场物理理论的发展. 在此基础上, 针对该研究方向未来的发展, 我们认为可以从以下几个方面开展更深入的实验和理论研究. 首先, 发展量子态分辨的精密测量方法, 研究强场 RSE 过程产生的里德伯态的 (n, l) 布居分布以及俘获到不同量子态的概率; 其次, 精确控制分子的初始状态 (如选择特定准直方向、特定轨道结构等), 分辨不同产物通道 (如母体分子里德伯态, 不同碎片的里德伯态等),

研究复杂分子体系的强场 RSE 过程, 深入理解强场 RSE 过程的分子结构效应; 再次, 强场 RSE 与其他强场物理过程 (如 ATI、阈值下谐波、双电离等) 的关联, 也是一个值得研究的课题; 最后, 通过精确控制超快强激光场, 实现对俘获动力学的调控, 将有助于更深入的理解其中的物理机制. 最近, 有实验和理论研究表明, 采用双色激光场并调节相对相位和强度, 可以有效地改变原子的俘获概率^[67,73,103–109], 这也为未来调控强场 RSE 和里德伯电子动力学过程提供了思路.

参考文献

- [1] Strickland D 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030502
- [2] Mourou G 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030501
- [3] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **5** 1307
- [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [5] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [6] Corkum P B 2011 *Phys. Today* **64** 36
- [7] Tisch J W G 2008 *Nat. Phys.* **4** 350
- [8] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [9] Hassan M T, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [10] Levesque J, Itatani J, Zeidler D, Pépin H, Kieffer J-C, Corkum P B, Villeneuve D M 2006 *J. Mod. Opt.* **53** 185
- [11] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carré B, Taïeb R, Salières P 2010 *Nat. Phys.* **6** 200
- [12] Morales F, Richter M, Patchkovskii S, Smirnova O 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **108** 16906
- [13] Lein M, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. A* **66** 051404(R)
- [14] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavičić D, Bandulet H C, Pépin H, Kieffer J C, Dörner R, Villeneuve D M, Corkum P B 2008 *Science* **320** 1478
- [15] Gertsvolf M, Jean-Ruel H, Rajeev P P, Klug D D, Rayner D M, Corkum P B 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 243001
- [16] Park I Y, Kim S, Choi J, Lee D H, Kim Y J, Kling M F, Stockman M I, Kim S W 2011 *Nat. Photonics* **5** 677
- [17] Gauthier D, Ribic P R, De Ninno G, Allaria E, Cinquegrana P, Danailov M B, Demidovich A, Ferrari E, Giannessi L, Mahieu B, Penco G 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 114801
- [18] Gauthier D, Allaria E, Coreno M, et al. 2016 *Nat. Commun.* **7** 13688
- [19] Wang B B, Li X F, Fu P M, Chen J, Liu J 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 2729
- [20] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [21] Zhao L, Zhang Q, Dong J W, Lü H, Xu H F 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 223201 (in Chinese) [赵磊, 张琦, 董敬伟, 吕航, 徐海峰 2016 物理学报 **65** 223201]
- [22] Manschwetus B, Nubbemeyer T, Gorling K, Steinmeyer G, Eichmann U, Rottke H, Sandner W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 113002
- [23] Nubbemeyer T, Eichmann U, Sandner W 2009 *J. Phys.*

- B:At. Mol. Opt. Phys.* **42** 134010
- [24] McKenna J, Zeng S, Hua J J, Sayler A M, Zohrabi M, Johnson N G, Gaire B, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043425
- [25] Lv H, Zhang J F, Zuo W L, Jin M X, Xu H F, Ding D J 2014 *J. Phys. Conf. Ser.* **488** 032036
- [26] Lv H, Zuo W L, Zhao L, Xu H F, Jin M X, Ding D J, Hu S L, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **93** 033415
- [27] Sun F H, Lu C X, Ma Y Z, Pan S Z, Wang J W, Zhang W B, Qiang J J, Chen F, Ni H C, Li H, Wu J 2021 *Opt. Express* **29** 31240
- [28] Wu J, Vredenburg A, Ulrich B, Schmidt L P, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Dömer R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 043003
- [29] Zimmermann H, Buller J, Eilzer S, Eichmann U 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 123003
- [30] Xu S P, Liu M Q, Hu S L, Shu Z, Quan W, Xiao Z L, Zhou Y, Wei M Z, Zhao M, Sun R P, Wang Y L, Hua L Q, Gong C, Lai X Y, Chen J, Liu X J 2020 *Phys. Rev. A* **102** 043104
- [31] Zhao L, Dong J W, Lv H, Yang T X, Lian Y, Jin M X, Xu H F, Ding D J, Hu S L, Chen J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 053403
- [32] Larimian S, Erattupuzha S, Lemell C, Yoshida S, Nagele S, Maurer R, Baltuška A, Burgdörfer J, Kitzler M, Xie X H 2016 *Phys. Rev. A* **94** 033401
- [33] Yun H, Mun J H, Hwang S I, Park S B, Ivanov I A, Nam C H, Kim K T 2018 *Nat. Photonics* **12** 62
- [34] Shvetsov-Shilovski N I, Goreslavski S P, Popruzhenko S V, Becker W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
- [35] Landsman A S, Pfeiffer A N, Hofmann C, Smolarski M, Cirelli C, Keller U 2013 *New J. Phys.* **15** 013001
- [36] Lin Y W, Williams S, Odom B C 2013 *Phys. Rev. A* **87** 011402
- [37] Huang K Y, Xia Q Z, Fu L B 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033415
- [38] Shomsky K N, Smith Z S, Haan S L 2009 *Phys. Rev. A* **79** 061402(R)
- [39] Xia Q Z, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033404
- [40] Volkova E A, Popov A M, Tikhonova O V 2011 *J. Exp. Theor. Phys.* **113** 394
- [41] Li Q G, Tong X-M, Morishita T, Wei H, Lin C D 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023421
- [42] Zimmermann H, Patchkovskii S, Ivanov M, Eichmann U 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 013003
- [43] Hu S L, Hao X L, Lv H, Liu M Q, Yang T Q, Xu H F, Jin M X, Ding D J, Li Q G, Li W D, Becker W, Chen J 2019 *Opt. Express* **27** 31629
- [44] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
- [45] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [46] Dura J, Camus N, Thai A, Britz A, Hemmer M, Baudisch M, Senftleben A, Schroter C D, Ullrich J, Moshhammer R, Biegert J 2013 *Sci. Rep.* **3** 2675
- [47] Chini M, Wang X W, Cheng Y, Wang H, Wu Y, Cunningham E, Li P C, Heslar J, Telnov D A, Chu S I, Chang Z H 2014 *Nat. Photonics* **8** 437
- [48] Xiong W H, Peng L Y, Gong Q H 2017 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **50** 032001
- [49] Eichmann U, Nubbemeyer T, Rottke H, Sandner W 2009 *Nature* **461** 1261
- [50] Bredtmann T, Patchkovskii S, Ivanov M Y 2017 *New J. Phys.* **19** 073011
- [51] Bogatskaya A V, Volkova E A, Popov A M 2016 *Laser Phys.* **26** 015301
- [52] Lin C D, Le A T, Chen Z J, Morishita T, Lucchese R 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 122001
- [53] Becker W, Grasbon E, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [54] Becker W, Goreslavski S P, Milošević D B, Paulus G G 2018 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **51** 162002
- [55] Becker W, Liu X J, Ho P J, Eberly J H 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1011
- [56] Zhou Y M, Lu P X 2016 *Sci. Sin. -Phys. Mech. Astron.* **47** 033005
- [57] Lein M 2007 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **40** R135
- [58] Anstötter C S, Bull J N, Verlet J R R 2016 *Int. Rev. Phys. Chem.* **35** 509
- [59] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quantum Electron.* **33** 17
- [60] Landsman A S, Keller U 2015 *Phys. Rep.* **547** 1
- [61] Zimmermann H, Eichmann U 2016 *Phys. Scr.* **91** 104002
- [62] Gallagher T F 1988 *Rep. Prog. Phys.* **51** 143
- [63] Softley T P 2007 *Int. Rev. Phys. Chem.* **23** 1
- [64] Larimian S, Lemell C, Stummer V, Geng J W, Roither S, Kartashov D, Zhang L, Wang M X, Gong Q H, Peng L Y, Yoshida S, Burgdörfer J, Baltuška A, Kitzler M, Xie X H 2017 *Phys. Rev. A* **96** 021403(R)
- [65] Larimian S, Erattupuzha S, Baltuška A, Kitzler-Zeiler M, Xie X H 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 013021
- [66] Zhao M, Wang Y L, Quan W, Lai X Y, Liu H P, Lu J D, Liu X J 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043115
- [67] Zhang W B, Yu Z Q, Gong X C, Wang J P, Lu P F, Li H, Song Q Y, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Zeng H P, He F, Wu J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 253202
- [68] Zhang W B, Li H, Gong X C, Lu P F, Song Q Y, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Zeng H P, Wu J 2018 *Phys. Rev. A* **98** 013419
- [69] Sun F H, Zhang W B, Lu P F, Song Q Y, Lin K, Ji Q Y, Ma J Y, Li H X, Qiang J J, Gong X C, Li H, Wu J 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 035601
- [70] Ma J Y, Li H, Lin K, Ji Q Y, Zhang W B, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Lu P F, Gong X C, Wu J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 023414
- [71] Ma J Y, Zhang W B, Lin K, Ji Q Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Chen F, Tong J H, Lu P F, Li H, Gong X C, Wu J 2019 *Phys. Rev. A* **100** 063413
- [72] Zhang W B, Gong X C, Li H, Lu P F, Sun F H, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Qiang J J, He F, Wu J 2019 *Nat. Commun.* **10** 757
- [73] Zhang W B, Lu P F, Gong X C, Li H, Ji Q Y, Lin K, Ma J Y, Li H X, Sun F H, Qiang J J, Chen F, Tong J H, Wu J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033401
- [74] Ammoso M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Eksp. Teor. Fiz.* **91** 2008
- [75] Piraux B, Mota-Furtado F, O'Mahony P F, Galstyan A, Popov Y V 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043403
- [76] Chen Z J, Morishita T, Le A T, Wickenhauser M, Tong X M, Lin C D 2006 *Phys. Rev. A* **74** 053405
- [77] Li Q G, Tong X M, Morishita T, Jin C, Wei H, Lin C D 2014 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204019
- [78] Chetty D, Glover R D, deHarak B A, Tong X M, Xu H, Pauly T, Smith N, Hamilton K R, Bartschat K, Ziegel J P, Douguet N, Luiten A N, Light P S, Litvinyuk I V, Sang R T 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053402
- [79] Liu M Q, Xu S P, Hu S L, Becker W, Quan W, Liu X J,

- Chen J 2021 *Optica* **8** 765
- [80] Eichmann U, Saenz A, Eilzer S, Nubbemeyer T, Sandner W 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 203002
- [81] Venzke J, Reiff R, Xue Z, Jaroń-Becker A, Becker A 2018 *Phys. Rev. A* **98** 043434
- [82] Xie X, Wu C, Liu H, Li M, Deng Y K, Liu Y Q, Gong Q H, Wu C Y 2013 *Phys. Rev. A* **88** 065401
- [83] Emmanouilidou A, Lazarou C, Staudte A, Eichmann U 2012 *Phys. Rev. A* **85** 011402(R)
- [84] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 183903
- [85] Santra R, Gordon A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 073906
- [86] Pavičić D, Lee K F, Rayner D M, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 243001
- [87] Doumy G, DiMauro L F 2008 *Science* **322** 1194
- [88] Busuladžić M, Hasović E, Becker W, Milošević D B 2012 *J. Chem. Phys.* **137** 134307
- [89] Lin Z Y, Jia X Y, Wang C L, Hu Z L, Kang H P, Quan W, Lai X Y, Liu X J, Chen J, Zeng B, Chu W, Yao J P, Cheng Y, Xu Z Z 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 223001
- [90] Yao J P, Li G H, Jia X Y, Hao X L, Zeng B, Jing C R, Chu W, Ni J L, Zhang H S, Xie H Q, Zhang C J, Zhao Z X, Chen J, Liu X J, Cheng Y, Xu Z Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 133001
- [91] Wang P Y, Jia X Y, Fan D H, Chen J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 143201 (in Chinese) [王品懿, 贾欣燕, 樊代和, 陈京 2015 物理学报 **64** 143201]
- [92] Monfared M, Irani E, Sadighi-Bonabi R 2018 *J. Chem. Phys.* **148** 234303
- [93] Shu Z, Liu M, Hu S L, Chen J 2020 *Opt. Express* **28** 11165
- [94] Liu M Q, Shu Z, Hu S L, Chen J 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 095601
- [95] Maher-McWilliams C, Douglas P, Barker P F 2012 *Nat. Photonics* **6** 386
- [96] Cai X M, Zheng J, Lin Q 2013 *Phys. Rev. A* **87** 043401
- [97] Eilzer S, Eichmann U 2014 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204014
- [98] Wang P X, Wei Q, Cai P, Wang J X, Ho Y K 2016 *Opt. Lett.* **41** 230
- [99] Chen J H, Wang J F, Li X F, Yuan X Q, Wang P X 2017 *J. Appl. Phys.* **121** 103105
- [100] Matthews M, Morales F, Patas A, Lindinger A, Gateau J, Berti N, Hermelin S, Kasparian J, Richter M, Bredtmann T, Smirnova O, Wolf J P, Ivanov M 2018 *Nat. Phys.* **14** 695
- [101] Mun J H, Ivanov I A, Yun H, Kim K T 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063429
- [102] Ortmann L, Hofmann C, Ivanov I A, Landsman A S 2021 *Phys. Rev. A* **103** 063112
- [103] Ge P P, Liu Y Q 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 125001
- [104] Chen A, Kling M F, Emmanouilidou A 2017 *Phys. Rev. A* **96** 033404
- [105] Vilà A, Katsoulis G P, Emmanouilidou A 2019 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **52** 015604
- [106] Xu T T, Gong W J, Zhang L L, Qi Y 2020 *Opt. Express* **28** 35168
- [107] Katsoulis G P, Sarkar R, Emmanouilidou A 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033403
- [108] Cao C P, Li M, Liang J T, Guo K Y, Zhou Y M, Lu P X 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 035601
- [109] Li Y B, Xu J K, Chen H M, Li Y H, He J J, Qin L L, Shi L k, Zhao Y G, Tang Q B, Zhai C Y, Yu B H 2021 *Opt. Commun.* **493** 127019

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Rydberg state excitation of atoms and molecules in ultrafast intense laser field*

Shen Xing-Chen Liu Yang Chen Qi Lü Hang Xu Hai-Feng[†]*(Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)*

(Received 28 June 2022; revised manuscript received 24 July 2022)

Abstract

When atoms or molecules are irradiated by a strong laser field with pulse duration of tens of femtoseconds and intensity larger than 10^{13} W/cm², they will generally undergo tunneling ionization, which will induce various non-perturbative and highly nonlinear phenomena. Investigations into the strong field physical processes is of significance in studying attosecond physics, molecular orbital imaging, ultrafast electron diffraction and advanced short ultraviolet light sources. While there is a relatively long history of the studies of tunneling ionization induced physics including high-order above threshold ionization (HATI), high-order harmonic generation (HHG) and non-sequential double ionization (NSDI), it is until recently to surprisingly find that in the tunneling ionization region, neutral atoms or molecules can survive in strong laser fields in highly excited Rydberg states. As a basic process of the interaction between ultrafast strong laser fields and atoms or molecules, such a Rydberg state excitation (RSE) has been viewed as an important supplement to the physical picture of the tunneling ionization. During the past several years, the extensive research attention has been paid to the RSE process in strong laser field. Various theoretical and experimental methods have been developed to investigate the strong field RSE of both atoms and molecules, to understand the underlying physical mechanism behind the recapture of the tunneling electrons and to reveal the quantum features and molecular structure effect in RSE. These advances have brought about an in-depth understanding and a systematic view of the atomic and molecular RSE in strong laser fields, as well as their relations to the other tunneling ionization induced physical processes such as ATI, HHG and NSDI. Here, we systematically review recent research progress of the atomic and molecular RSE in strong laser fields. We particularly focus on several aspects of this strong field process, i.e. the physical mechanism of the recapture, the quantum feature and the interference of different orbits, and the structure effect in molecular RSE. In addition, neutral particle acceleration and coherent radiation which can be induced by the strong field RSE, are also discussed. Finally, we provide a short summary and prospect of the future studies on the strong field RSE.

Keywords: ultrafast intense laser field, Rydberg state excitation, tunneling ionization, capture**PACS:** 32.80.Ee, 32.80.Rm, 33.80.Rv, 34.80.Gs**DOI:** 10.7498/aps.71.20221258

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2019YFA0307700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174148, 12074144, 11874179).

[†] Corresponding author. E-mail: xuhf@jlu.edu.cn



超快强激光场中原子分子的里德伯态激发

沈星辰 刘洋 陈淇 吕航 徐海峰

Rydberg state excitation of atoms and molecules in ultrafast intense laser field

Shen Xing-Chen Liu Yang Chen Qi Lü Hang Xu Hai-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233202 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221258

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221258>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

反向旋转双色椭偏场中原子隧穿电离电子的全息干涉

Photoelectron holography in tunneling ionization of atoms by counter-rotating two-color elliptically polarized laser field

物理学报. 2022, 71(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212226>

一价镧离子高 n 里德伯态

The study on high n Rydberg state of La II

物理学报. 2019, 68(4): 043201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181980>

铯原子 $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$)里德伯态的紫外单光子激发及量子亏损测量

Measurement of quantum defect of cesium $nP_{3/2}$ ($n = 70-94$) Rydberg states by using ultraviolet single-photon Rydberg excitation

物理学报. 2019, 68(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182283>

基于里德伯超级原子快速制备三粒子单重态

Fast generation of three-atom singlet state with Rydberg superatom

物理学报. 2021, 70(12): 120301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201841>

稀薄里德伯原子气体中的两体纠缠

Two-body entanglement in a dilute gas of Rydberg atoms

物理学报. 2018, 67(3): 034202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172052>

里德伯原子的射频脉冲响应特性

Response characteristics of radio frequency pulse of Rydberg atoms

物理学报. 2022, 71(20): 207402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220972>

专题: 阿秒物理

强激光场原子电离光电子轨迹干涉全息理论及应用*

陶建飞¹⁾ 夏勤智²⁾ 廖临谷³⁾ 刘杰^{4)†} 刘小井^{1)‡}

1) (上海科技大学大科学中心, 上海 201210)

2) (北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

3) (北京大学物理学院, 北京 100871)

4) (中国工程物理研究院研究生院, 北京 100193)

(2022年6月30日收到; 2022年7月25日收到修改稿)

隧穿电子在外场的牵引下一个光周期以内返回核附近发生再散射现象是理解强场物理的基本物理图像. 再散射电子与直接电离电子波函数发生干涉导致的所谓强场光电子全息在研究强场电离基本原理以及探测超快电子动力学上具有显著的优势. 本文给出了量子轨迹干涉作为光电子全息基本物理背景的图像, 合理地引入库仑势的效应, 发展了一致性 glory 再散射理论. 将此理论的计算结果与实验以及含时薛定谔方程做对比, 得到了很好的定量符合结果. 同时, 研究了通过库仑 glory 再散射过程作为时间快门对超短光脉冲进行时间域重构的方法. 对强场光电子全息的研究将加深对原子分子超快物理过程的认知, 为未来利用或者操控这一过程做出重要贡献.

关键词: 隧穿电离, 光电子全息, 库仑 glory 效应, 双色激光场**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Rv**DOI:** 10.7498/aps.71.20221296

1 引言

光与物质的相互作用是物理学中的重要研究课题. 激光的发明以及发展极大地促进了此研究领域的进展. 强激光场与原子分子相互作用导致了一系列非线性非微扰的物理现象: 自 1979 年 Agostini 等^[1] 在实验中发现多光子电离现象以来, 后续强场物理过程, 如高阈能上电离^[2]、高次谐波产生^[3]、非序列双(多)电离^[4]等获得了广泛的实验以及理论研究. 激光技术的发展推动了阿秒科学 (attosecond science, $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) 这一全新物理研究领域的形成以及发展^[5]. 很早之前人们就知道, 如果要

快速移动的物体进行照相就需要曝光时间更短的相机快门, 物理学中研究超快过程也是如此, 如典型的用于物理学中的时间分辨测量 (time-resolved metrology) 的泵浦-探测实验技术的分辨率就依赖于使用的光信号的时间宽度. 如果要分辨更快的物理过程, 科学家就需要寻找更快更短的光脉冲信号. 相比较于自然界中存在的非相干光源来说, 激光这种理想光源更适合用于时间分辨测量. 从 1964 年激光锁模技术的发现到 2001 年研究人员在实验室中基于高次谐波产生获得阿秒光脉冲^[6,7], 激光脉冲时间宽度减少了超过 3 个数量级. 现如今实验室中获得的单个阿秒脉冲宽度可以短至 43 as^[8]. 众所周知, 微观世界下, 物理学化学生物学之间的

* 国家自然科学基金 (批准号: 11574020, 11775030, 11974057) 和国家自然科学基金委员会-中国工程物理研究院联合基金 (批准号: U1930403) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jliu@gscaep.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn

分界线将变得模糊,电子在原子、分子以及纳米结构中的超快运动将作为它们的共同特点将它们有机地联系在一起.原子分子轨道上电子运动、半导体中电子运动以及超高密度等离子气体、聚变靶物质内部电子的集体运动时间尺度皆在阿秒的量级^[9].因此从这些方面来说,一旦人们获得了研究阿秒电子运动的能力,阿秒科学的发展将推动对于电子在其固有时间尺度上的动力学的深刻认识,进而促进阿秒化学、光催化、生物大分子光化学反应、核聚变以及光波电子学(lightwave electronics)等应用领域的发展^[10,11].

超强超快激光脉冲与原子分子相互作用会带来束缚电子的隧穿电离过程.由于激光场的振荡特性,电子所受的电场力会在亚飞秒的时间尺度内发生反转,导致刚刚隧穿出来离原子核不远的电子在外场作用下在运动过程中会返回原子核附近.这一隧穿-返回-复合或者再散射过程是理解强场电离的基本物理图景^[12].而电场矢量方向的反转发生在单个光周期以内,因此再散射过程的时间尺度通常都在亚飞秒到阿秒的量级.观测或者操控强场电离的再散射过程就是在电子的固有运动时间尺度上观测或者操控其动力学.返回原子核附近的电子接下来的运动根据受到核的库仑势作用的不同,会呈现不同的运动轨迹:既有受到核的轻微前向散射最终动能较小($\leq 2 U_p$)的光电子,也有可能受到核的强烈散射而运动方向发生改变最终能量很大(约 $10 U_p$)的光电子(其中 $U_p = \varepsilon^2 / (4\omega^2)$ 为电子在激光场中运动的有质动力能, ε 为激光电场强度, ω 为激光中心频率).当然,如果隧穿电子初始垂直于激光电场方向的横向动量足够大的话,光电子在运动过程中受到的核的作用可以忽略不计,这样的可以称为直接电离电子轨迹.电子波包从原子分子轨道隧穿出来,那么不可避免将会带有原子分子轨道的信息,同时再散射电子与核的碰撞过程也会留下核或原子实的结构以及散射过程自身等信息,如果能从中提取出振幅或者相位信息,原则上来说就可以观测甚至操控亚飞秒到阿秒时间尺度上的电子动力学.强场光电子全息(strong field photoelectron holography)就是这样的一种技术^[13].上述经过核的再散射作用的电子轨迹如果与直接电离电子轨迹具有相同末态,那么它们可以发生干涉,干涉结构就体现在最终的光电子谱上^[14].这样的图景类似光学中的全息概念.对应于受到核前向散射

或者背向散射的光电子轨迹,在最终的动量谱中都有对应的干涉结构出现^[15,16].分析强场光电子全息形成的光电子动量谱,可提取很多关于原子分子结构以及动力学信息,如隧穿电子波包的相位信息^[17]、分子轨道的结构信息^[18]、分子轨道电子动力学信息^[19]、分子轨道的宇称等^[20],同时强场光电子全息也可以对隧穿电离过程信息进行提取,比如隧穿时间、回碰时间以及光电子初始动量等^[21,22],强场光电子全息也可以用来研究非偶极电离相关问题以及用来重构激光电场等^[23].由此可以看出,强场光电子全息作为一种从电子波包干涉角度来诠释的技术,对于研究原子分子中的超快电子过程有着得天独厚的优势.

本文将介绍前向强场光电子全息的基本物理理论,尤其关注最近发展的一致性库仑 glory 再散射理论.这一理论对于定量解释光电子动量谱干涉条纹结构具有重要的作用.作为潜在的应用,介绍利用强场光电子全息再散射时间快门对超短光脉冲进行时间重构的方法,这对于超快物理过程的表征具有显著的意义.

2 基本理论图像

2.1 强场光电子全息的基本物理图像

强激光场隧穿电离过程中,电子波包首先通过被外场压低的库仑势而形成的势垒隧穿出来,此时光电子离母核有一段距离.接下来,光电子在核的库仑势以及外电磁场的共同作用下做振荡运动,振荡电子接下来有可能在运动中返回原子核并受到核的散射作用并最终到达探测器上,或者光电子也可能直接运动出去并被探测器接受.这样的两种光电子轨迹可能发生干涉,类似于光学中的全息概念,并且在最终的光电子动量谱中留下可探测的干涉结构^[24,25].通过研究光电子动量谱中的全息干涉结构,可以对强场超快电离过程中的时空信息进行研究.

一般来说,在强场光电子全息干涉的研究中,可以将光电子波函数写成直接电离与再散射波函数的叠加形式:

$$\psi = \psi_{\text{sig}} + \psi_{\text{ref}}. \quad (1)$$

为了给出直接波和信号波的具体形式,可以从第一性原理出发,回到原子在强激光场中的薛定谔方程:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi = H(t) \psi. \quad (2)$$

可以利用时间演化算符 $U(t, 0) = \mathcal{T} e^{-i \int_0^t H(t') dt'}$ 将 (2) 式的偏微分方程写成如下形式: $\psi(t) = U(t, 0) \psi(0)$. 其中 \mathcal{T} 表示时序算符 (time-ordering operator), $H(t) = \mathbf{p}^2/2 + V_0 + H_1$ 是体系的哈密顿量, V_0 表示库仑势, $H_1 = \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A}^2/2$ 是速度规范下的相互作用哈密顿量. 记 $U_0 = e^{-i \int_0^t H_0 dt'}$ 表示对应原子哈密顿量 $H_0 = \mathbf{p}^2/2 + V_0$ 的时间演化算符, 以及自由电子在电磁场中运动的所谓 Volkov 演化算符: $U_V = e^{-i \int_0^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]^2 dt'}$, 积分下标“0”表示某一初始时间. 利用 Dyson 展开式, 可以将总的时间演化算符写成如下形式:

$$U(t, 0) = U_0(t, 0) - i \int_0^t dt_0 U(t, t_0) H_1 U_0(t_0, 0),$$

$$U(t, t_0) = U_V(t, t_0) - i \int_{t_0}^t dt_r U_V(t, t_r) V_0 U(t_r, t_0). \quad (3)$$

将 (3) 式中的关系式代入方程 (2), 那么总的电子波函数可以写为

$$\begin{aligned} \psi(t) &= U_0(t, 0) \psi(0) - i \int_0^t dt_0 U(t, t_0) H_1 U_0(t_0, 0) \psi(0) \\ &= U_0(t, 0) \psi(0) - i \int_0^t dt_0 U_V(t, t_0) H_1(t_0) U_0(t_0, 0) \\ &\quad \times \psi(t_0) - \int_{t_0}^t \int_0^t dt_r dt_0 U_V(t, t_r) V_0(t_r) \\ &\quad \times U(t_r, t_0) H_1(t_0) U_0(t_0, 0) \psi(0), \end{aligned} \quad (4)$$

式中, 右边第一项表示仍然处于基态的波函数部分, 在这里并不重要; 第二项表示参考波; 最后一项代表受到核的再散射波函数部分; t_0 表示隧穿时间; t_r 表示回碰时刻.

在此基础上, 可以给出最终光电子的末态动量分布:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int_0^t dt_0 \langle \mathbf{p} | U_V(t, t_0) H_1(t_0) U_0(t_0, 0) | \psi(0) \rangle \\ &\quad - \int_{t_0}^t \int_0^t dt_r dt_0 \langle \mathbf{p} | U_V(t, t_r) V_0(t_r) U(t_r, t_0) \\ &\quad \times H_1(t_0) U_0(t_0, 0) | \psi(0) \rangle. \end{aligned} \quad (5)$$

为了进一步给出符合物理直觉的理论形式, 考虑这里的研究中外场的强度在离核较远处远大于库仑势, 使用强场近似手段 (strong field approximation, SFA), 将 (5) 式中的演化算符 $U(t_r, t_0)$ 用

Volkov 算符 $U_V(t_r, t_0) = e^{-i \int_{t_0}^{t_r} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau}$ 来替换, 那么散射振幅可以简化如下:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int_0^t dt_0 e^{-i \int_{t_0}^t d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2} \langle \mathbf{p} | H_1(t_0) | \psi_0 \rangle e^{i I_p t_0} \\ &\quad - \int_{t_0}^t dt_r \int_0^t dt_0 \int d\mathbf{k} e^{-i \int_{t_r}^t d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2} \langle \mathbf{p} | V_0(t_r) | \mathbf{k} \rangle \\ &\quad \times e^{-i \int_{t_0}^{t_r} d\tau [\mathbf{k} + \mathbf{A}(\tau)]^2} \langle \mathbf{k} | H_1(t_0) | \psi_0 \rangle e^{i I_p t_0}, \end{aligned} \quad (6)$$

其中 I_p 表示原子的电离能.

考虑到我们的问题主要涉及量子轨迹的相位, 略去包括偶极跃迁项等变化缓慢的系数项, 就可以给出如下将散射振幅写成参考波与再散射波干涉的形式:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &\sim -i \int_0^t dt_0 e^{-i S_{\text{ref}}(t, t_0)} \\ &\quad - \int_{t_0}^t dt_r \int_0^t dt_0 \int d\mathbf{k} e^{-i S_{\text{sig}}(t, t_r)}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中的相位分别为

$$S_{\text{ref}} = \frac{1}{2} \int_{t_0}^t d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 - I_p t_0, \quad (8)$$

以及

$$S_{\text{sig}} = \frac{1}{2} \int_{t_r}^t d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 + \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_r} d\tau [\mathbf{k} + \mathbf{A}(\tau)]^2 - I_p t_0. \quad (9)$$

给出了参考波和信号波的相位, 理论上就可以计算最终光电子动量谱中的全息干涉结构, 如图 1 所示. 可以看到, 前向全息干涉结构最明显的表现为类似于蜘蛛腿的干涉结构.

从图 1 可以看出, 对于小的纵向动量 (沿激光极化方向动量), 强场近似理论高估了干涉极大的位移, 这主要是库仑势带来的效果. 要对强场电离过程中的库仑势做完备的定量处理, 需要引入所谓的 glory 散射概念来处理所谓的库仑奇点.

2.2 强场电离中的库仑 glory 奇点效应

2.2.1 glory 散射基本概念

在经典散射实验中, 动能为 E_k 的一束粒子流以入射垂直距离为 x 进入散射势中受到散射作用, 记最终粒子的散射角为 $\Theta = \Theta(x)$. 一般来说, 形式上散射截面可以写为如下形式:

$$\sigma(\Theta) \propto \frac{x}{\sin \Theta} \left(\frac{d\Theta}{dx} \right)^{-1}. \quad (10)$$

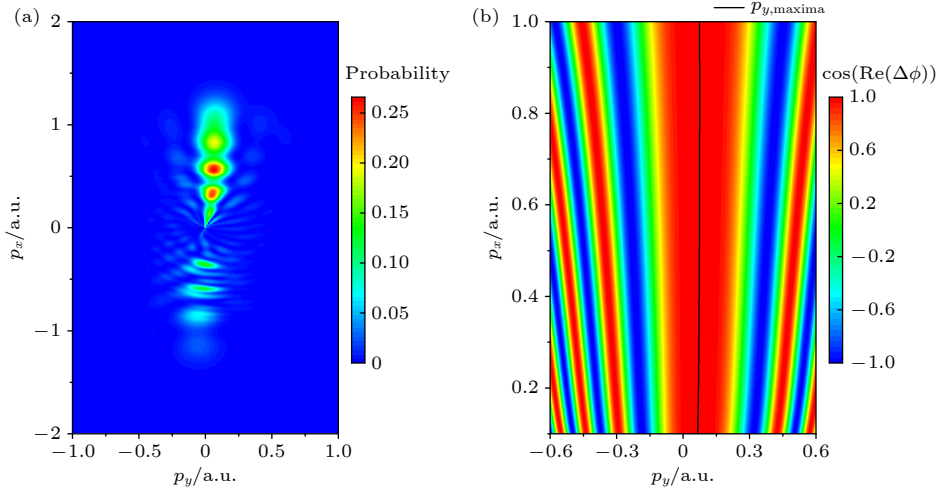


图 1 正交双色场中极化平面内强场光电子全息动量谱 ($p_z = 0$) (a) 含时薛定谔方程计算结果; (b) 强场近似计算结果, 黑线表示强场近似计算的干涉极大位置^[23]

Fig. 1. Strong field photoelectron holography in laser polarization plane ($p_z = 0$) with an OTC field calculated by TDSE (a) and SFA (b). Black solid line in panel (b) is the interference maxima estimated by SFA^[23].

从 (10) 式可以看出, 当 x 为有限值而 $\sin \Theta = 0$, $\Theta = 0, \pi$ 时, 散射界面发散. 这样的现象称为前向 ($\Theta = 0$) 或者背向 ($\Theta = \pi$) glory 散射. 在自然界中, 在高峰上的游人向下观察自己在下面云层上的投影时, 会在影子周围发现一圈光晕, 这就是由于太阳光与云层中的小水滴作用发生的背向 glory 现象. 在本文的描述中, 将导致散射界面发散的轴向奇点效应称为 glory 效应. 使用量子散射理论, 通常会发现 glory 角附近散射截面呈现贝塞尔函数的平方形式^[26]. 在强场隧穿电离过程中, 隧穿出来的电子初始离核有一定距离, 接下来将在库仑势与外场中运动, 这一过程与外场辅助的点源散射相似. 如果记初始与极化方向发射角为 α , 最终的出射角为 θ . 可以看到在点源散射中, 在发射角 $\alpha_g \neq 0, \neq \pi$ 的情况下有 $\theta = 0$. 而在点源散射情况下散射截面形式上可以写为 $\sigma(\theta) \sim \left| \frac{\sin \alpha}{\sin \theta} \left(\frac{d\theta}{d\alpha} \right)^{-1} \right|^2$. 上述情况就对应点源散射的 glory 散射现象. 因此, 在强场隧穿电离过程中, 必须考虑 glory 奇点效应.

2.2.2 一致性 glory 散射理论 (uniform glory rescattering theory, UGRT)

为严格起见, 这里不使用强场近似, 从第一性原理公式 (4) 出发^[27], 舍弃仍然处于基态的项, 那么光电子波函数可以写为

$$\psi(t) = -i \int_0^t dt_0 U(t, t_0) H_1 U_0(t_0, 0) \psi(0), \quad (11)$$

那么最终的散射振幅为

$$M_{\mathbf{p}} = -i \int_0^t dt_0 \langle \mathbf{p} | U(t, t_0) H_1 U_0(t_0, 0) | \psi(0) \rangle. \quad (12)$$

在 (12) 式中插入完备性关系式 $\int d\mathbf{p}_0 |\mathbf{p}_0\rangle \langle \mathbf{p}_0| = 1$, 可以得到:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &= -i \int dt_0 \int d\mathbf{p}_0 \langle \mathbf{p} | U(t, t_0) | \mathbf{p}_0 \rangle \langle \mathbf{p}_0 | H_1 e^{i\mathbf{p}_0 t_0} | \psi_0 \rangle \\ &= -i \iint dt_0 d\mathbf{p}_0 G(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) \mathcal{D}(\mathbf{p}_0, t_0) e^{i\mathbf{p}_0 t_0}, \end{aligned} \quad (13)$$

其中 $G(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) = \langle \mathbf{p} | U(t, t_0) | \mathbf{p}_0 \rangle$ 表示动量空间的传播子, $\mathcal{D}(\mathbf{p}_0, t_0) = \langle \mathbf{p}_0 | H_1 | \psi_0 \rangle$ 表示偶极跃迁项. 对完整的传播子 $G(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0)$ 采用半经典近似^[28,29], 可以得到如下表达式:

$$G(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) \approx F(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) e^{iS(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0)}, \quad (14)$$

其中系数 $F(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) = \left[\frac{1}{(i2\pi)^3} \det \left(\frac{\partial^2 S}{\partial \mathbf{p}_0 \partial \mathbf{p}} \right) \right]^{\frac{1}{2}}$, 而半经典相位形式上可以写成:

$$S(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) = \int_{t_0}^{t_f} (-\mathbf{r}(t) \cdot \dot{\mathbf{p}}(t) - H) dt. \quad (15)$$

将传播子做半经典近似以后, 设 z 方向为激光的极化方向, 不考虑激光场原子相互作用的非偶极效应, 那么研究的系统关于 z 轴具有旋转对称性, 将 (14) 式代入散射振幅表达式 (13), 并且将积分在柱坐标系下写出, 可得:

$$M_{\mathbf{p}} \approx \iiint dt_0 dp_{\rho 0} dp_{z 0} d\phi p_{\rho 0} F \mathcal{D} \cdot e^{iA(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0)}, \quad (16)$$

其中 $A(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) = S(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_0, t_0) + I_p t_0$. 对变量 $t_0, p_{\rho 0}, p_{z 0}$ 应用鞍点近似, 考虑到经典哈密顿力学, 分别得到对应的鞍点方程:

$$\begin{cases} \mathbf{r}(t_s) \cdot \dot{\mathbf{p}}(t_s) + H(t_s) + I_p = 0, \\ z(t_s) = 0, \\ \boldsymbol{\rho}_s \cdot \mathbf{p}_{\rho s} = 0, \end{cases} \quad (17)$$

式中第一项可以给出鞍点对应的复时间 t_s , 通常 t_s 在上半复平面, 因此通常选择的积分路径从 $t_s = t_0 + it_i$ 垂直向下到达实轴 t_0 时刻, 然后沿着实轴演化到脉冲结束 $t_0 \rightarrow t_f$. (17) 式后两项对隧穿初始的位置以及动量做了相应的限制. 不对角度 ϕ 做鞍点近似的原因是在某些情况下, 如这里考虑的 glory 奇异情况, 系数项相对于相位变化并不缓慢, 因此不能适用鞍点近似的条件. 对 $t_0, p_{\rho 0}, p_{z 0}$ 做鞍点近似后, (16) 式可以写为

$$M_{\mathbf{p}} \approx \int d\phi p_{\rho s} \left[\frac{(i2\pi)^3}{\det \left(\frac{\partial^2 A}{\partial(t_0, p_{\rho 0}, p_{z 0})} \Big|_s \right)} \right]^{\frac{1}{2}} \times F_s \mathcal{D}_s \cdot e^{iA_s(\mathbf{p}, t_f; \mathbf{p}_s, t_s)}, \quad (18)$$

(17) 式和 (18) 式中下标 s 均表示在鞍点处取值. 接下来, 适用一致性近似对积分变量 ϕ 进行变换^[30,31]: $\phi = 0 \leftrightarrow \varphi = 0, \phi = \pi \leftrightarrow \varphi = \pi$, 并且

$$A_s(\phi) = \bar{A}_s(\varphi) = A_0 + A_1 \cos \varphi, \quad (19)$$

其中 A_0 表示 $\phi = 0$ 和 $\phi = \pi$ 的两条半经典光电子轨迹的相位平均值, A_1 表示 $\phi = 0$ 和 $\phi = \pi$ 的两条半经典光电子轨迹的相位差的一半. 经过对上面的积分进行变量替换以及一系列推导, 散射振幅 (18) 式的形式可以简化为

$$M_{\mathbf{p}} \approx \int_0^{2\pi} d\varphi C(\varphi) e^{i(A_0 + A_1 \cos \varphi)}. \quad (20)$$

指数因子 $C(\varphi)$ 形式上表达为

$$C(\varphi) \propto \frac{D_s}{\sqrt{\frac{\partial^2 A}{\partial t} \Big|_s}} (A_1 \cos \varphi)^{\frac{1}{2}} \frac{p_{\rho s}}{p_{\rho f}} \det \left[\frac{\partial(p_{\rho s}, p_{z s})}{\partial(p_{\rho f}, p_{z f})} \right], \quad (21)$$

其中 $\frac{p_{\rho s}}{p_{\rho f}} \det \left[\frac{\partial(p_{\rho s}, p_{z s})}{\partial(p_{\rho f}, p_{z f})} \right]$ 表示初始相空间体积与末态相空间体积之比, 在数值计算过程中通过差分方

法给出这一项. 按照 Berry 一致性近似的思想, 接下来对指数系数 $C(\varphi)$ 做如下近似:

$$C(\varphi) \approx \frac{1}{2}[C(0) + C(\pi)] + \frac{1}{2}[C(0) - C(\pi)] \cos \varphi. \quad (22)$$

那么散射振幅可以进一步简化为

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}} &\approx \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} d\varphi [(C(0) + C(\pi)) + (C(0) \\ &\quad - C(\pi)) \cos \varphi] e^{i(A_0 + A_1 \cos \varphi)} \\ &= \frac{1}{2}(C(0) + C(\pi)) J_0(A_1) \\ &\quad - \frac{1}{2}(C(0) - C(\pi)) J_1(A_1), \end{aligned} \quad (23)$$

其中 J_0, J_1 为第一类贝塞尔函数.

通过以上推导可以很明显地看出, 初始值不同的无数条半经典光电子轨迹可以对同一个末态动量有贡献, 无数条轨迹干涉带来的效果最终会反映在光电子动量谱上. 之前的一般认知都是将光电子全息解释为直接电离轨迹和前向散射两条量子轨迹的干涉, 2.1 节的讨论也是如此. 但是, 从这一部分的理论可以看出, 光电子全息的双轨迹诠释是不完整的, 在实际的物理过程中, 每一个末态动量都有无数条光电子轨迹会做出贡献: 考虑一个特殊情况, 在末态横向动量为零的情况下 ($\mathbf{p}_g = (p_x = 0, p_y = 0, p_z \neq 0)$), 由于系统关于 z 轴的旋转对称性, 参考库仑势中的点源散射, 一定存在无数个不为零的初始横向动量 $p_{\perp 0} = \sqrt{p_{x0}^2 + p_{y0}^2}$, 它们的末态动量都为 \mathbf{p}_g . 如图 2 所示, 这种无数条轨迹的贡献形成了轴向的奇异结构 (caustic), 导致光电子动量谱中前向散射角为零附近的干涉条纹得到加强.

3 结果与应用

3.1 光电子全息干涉条纹的库仑 glory 增强

3.1.1 前向散射角为零 ($p_{\perp} = 0$) 附近干涉结构

从 2.2.2 节的理论推导出发, 当末态横向动量 (垂直于激光极化方向) 靠近零时, 对应 $\varphi = 0$ 与 $\varphi = \pi$ 的两条半经典轨迹完全对称, 因此有关系式 $C(0) = C(\pi)$, 代入到 (23) 式可以看出散射振幅 $M_{\mathbf{p}} \propto J_0(A_1)$. 为了给出一个简单的相位差表达式 A_1 , 可以从强场近似里的直接电离轨迹与再散射轨迹的相位差给出一个近似表达式. 考虑到关于

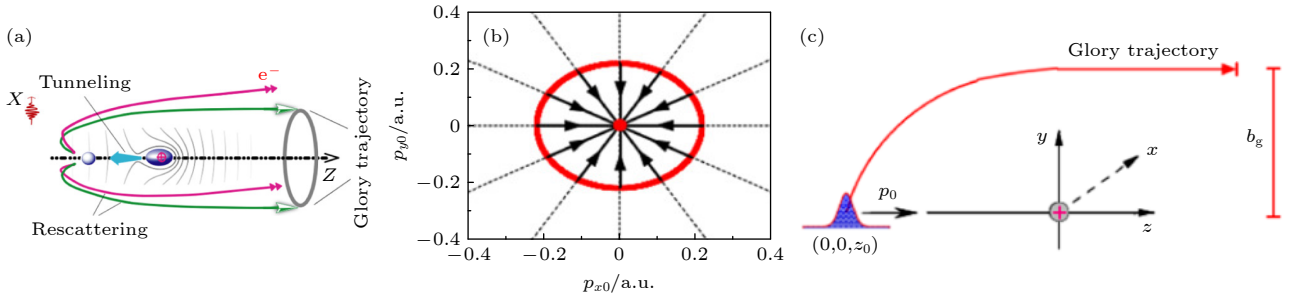


图 2 (a) glory 轨迹示意图; (b) 对应同一个末态动量的初始轨迹横向动量分布; (c) 离核距离 z_0 的高斯波包散射, glory 轨迹最终与 z 轴距离为 b_g [32]

Fig. 2. (a) Glory trajectories; (b) initial transverse momentum distribution corresponding to the same final photoelectron momentum; (c) scattering of a Gaussian wavepacket with a z_0 distance from the center, the distance of the glory orbit to the z axis is b_g [32].

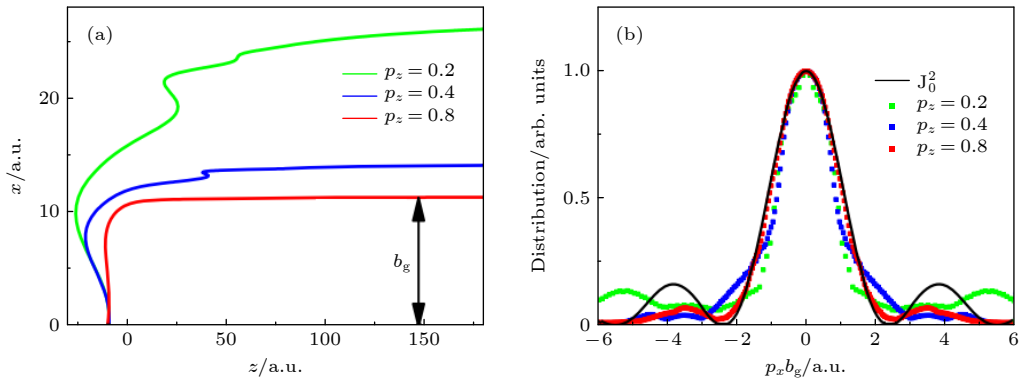


图 3 (a) 对应 $p_z = 0.2, 0.4, 0.8$ 的 glory 轨迹; (b) 对应 $p_z = 0.2, 0.4, 0.8$ 的横向动量分布. 黑线表示零阶贝塞尔函数平方结果 [32]

Fig. 3. (a) The glory trajectories with $p_z = 0.2, 0.4, 0.8$; (b) the transverse momentum distribution when $p_z = 0.2, 0.4, 0.8$. Black line is the zero-order Bessel function [32].

z 轴旋转对称的线极化光的情况, 从 (7) 式和 (8) 式出发, 通过计算可以得到 $\Delta S = \frac{1}{2} p_{\perp}^2 (t_r - t_0)$. 考虑到这里只考虑偏离前向 $p_{\perp} = 0$ 很小的距离 $\delta p_{\perp} = p_{\perp} - 0$, 对 ΔS 求一次导可得 $\delta S = \delta p_{\perp} p_{\perp} (t_r - t_0) \sim p_{\perp} \cdot b_g$, b_g 可以看成是前向散射轨迹与极化方向之间的垂直距离 (如图 2(c) 所示). 那么对应到 $\varphi = 0$ 与 $\varphi = \pi$ 的两条轨迹的相位差就是 $2p_{\perp} b_g$. 因此, 从这个简单的观察在前向散射角零附近时给出了 A_1 的一个简单表达:

$$A_1 \approx p_{\perp} b_g. \quad (24)$$

从而在前向很小的范围内, 光电子动量谱分布可以用 $|M_p|^2 \approx J_0^2(p_{\perp} b_g)$ 来表示. 在图 3 中, 使用一束波长 800 nm, 光强 87 TW/cm², 极化方向为 z 的线极化光电离氢原子基态, 其中图 3(a) 给出了分别对应三个不同末态动量 $p_z = 0.2, 0.4, 0.8$, $p_{\perp} = 0$ 时的光电子轨迹, 使用 shooting 方法可以给出每条轨迹的 b_g [30]. 在图 3(b) 中, 将计算得到的 b_g 代入理论结果 $|M_p|^2 \approx J_0^2(p_{\perp} b_g)$ 中, 与含时薛定谔方程

的结果 (图 3(b) 颜色点) 做对比, 可以看出两者符合得很好, 验证了本文理论的正确性.

3.1.2 前向散射角不为零 ($p_{\perp} \neq 0$) 附近干涉结构

当考虑偏离前向散射较大角度的时候, 3.1.1 节的结论就不适用了 [25]. 由于失去了旋转对称性, 需要同时考虑零阶以及一阶贝塞尔函数的影响. 为了计算 $C(\varphi)$ 以及 A_1 , 这里给定一个末态动量, 然后通过 shooting 方法来给出对应的初态, 知道了初态以后, 就可以通过求解经典方程给出光电子轨迹, 同时也可以给出轨迹的参数以及相位. 严格来说, 需要求解鞍点方程 (17) 来给出初始光电子位置以及动量. 研究计算发现, 这个计算方程可以简化. 通常来说, 从复时间 t_s 到实轴上的时刻 t_0 这一演化过程可以不考虑库仑势的作用, 因此, 为了给出初始时间, 可以通过求解鞍点方程:

$$\frac{[p_0 + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} + I_p = 0 \quad (25)$$

来给出, 其中 \mathbf{p}_0 为待定的初始值, $\mathbf{A}(t)$ 为激光场的矢量. 给出 $t_s = t_0 + it_i$ 后, 光电子的初始位置和速度分别为

$$\begin{cases} \mathbf{r}_0 = \text{Re} \int_{t_s}^{t_0} \mathbf{A}(t) dt, \\ \mathbf{v}_0 = \mathbf{p}_0 + \mathbf{A}(t_0). \end{cases}$$

接下来电子的运动通过经典牛顿方程进行演化, 相位可以通过 (15) 式同时进行计算.

图 4 给出了激光波长为 1200 nm, 强度为 $8.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 条件下氢原子电离的相关光电子轨迹. 计算结果显示, 在库仑势以及外场的共同作用下, 对应同一个末态有无数条轨迹有贡献. 图 4(a) 和图 4(b) 给出了末态动量为 $\mathbf{p}_f = (0.12, 0, 0.66)$ 时对应的 8 条光电子轨迹. 图 4(a) 表示轨迹位置的变化, 这些轨迹末态动量相同, 因而最终相互平行. 图 4(b) 表示这些轨迹对应的动量变化, 从黑色环上初始值出发最终收敛到一个点上, 表明产生了 glory 奇异效应. 图 4(c) 和图 4(d) 给出了对应同一个末态动量的垂直于极化方向的位置 (图 4(c)) 以及动量 (图 4(d)) 分布, 进一步验证了本文的理论

结果: 对于同一个末态, 有无数个初态与之对应.

图 5 给出了理论结果与实验研究的对比. 实验中, 使用波长为 7000 nm, 光强为 $7 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 的激光脉冲电离氙原子 6s 亚稳态, 给出的光电子动量谱具备光电子全息动量谱的蜘蛛腿结构. 利用 UGRT 理论计算给出了干涉结构的极小 (图 5(a)) 和极大 (图 5(b)) 的位置, GRT 理论对应只考虑零阶贝塞尔函数的情况. 库仑修正的强场近似理论 CCSFA 计算过程中只考虑两条轨迹干涉的情形, 可以发现其结果与实验差距非常大. GRT 理论在散射角为零附近符合得比较好, 这与上面的理论讨论一致. 当散射角较大时, 只描述前向小角度范围的 GRT 理论已经不能很好地描述实验: GRT 理论与 UGRT 理论预测的第一阶暗条纹位置基本一致, 与实验也符合得很好. 当条纹阶数上升时, UGRT 理论仍然能很好地符合实验结果, 而 GRT 理论则偏差较大. 实验结果验证了必须考虑无穷轨迹干涉的一致性 glory 再散射理论, 对于强场光电子全息中库仑势的作用给出了进一步的解释.

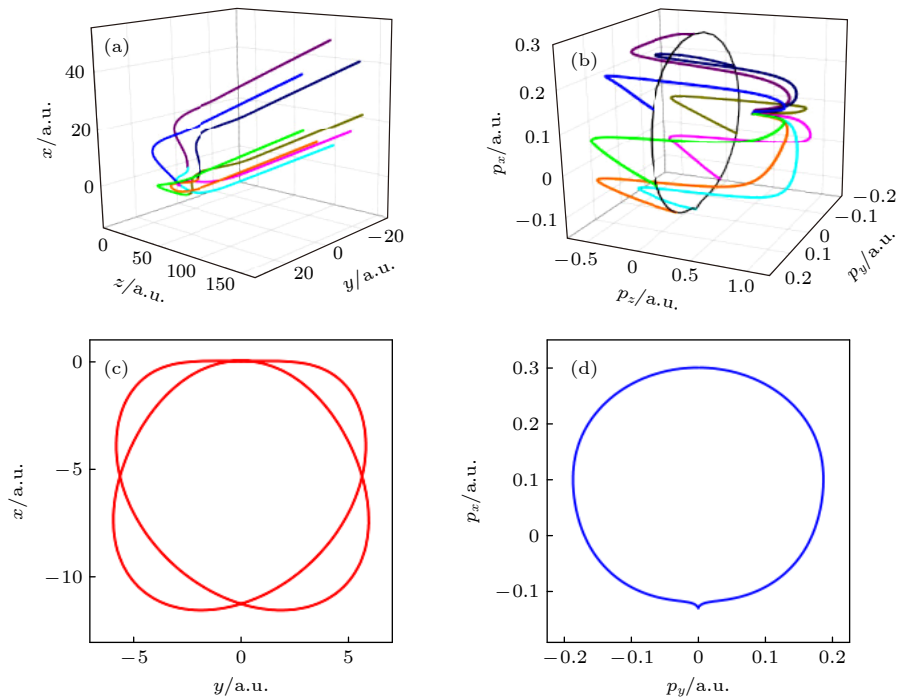


图 4 (a) 坐标空间以及 (b) 动量空间中对应同一个动量末态 $\mathbf{p}_f = (0.12, 0, 0.66)$ 的 8 条光电子轨迹. 对应同一个动量末态 \mathbf{p}_f 的初始 (c) 横向坐标以及 (d) 动量分布^[27]

Fig. 4. The photoelectron trajectories in (a) coordinate and (b) momentum spaces corresponding to the same final momentum $\mathbf{p}_f = (0.12, 0, 0.66)$. The initial (c) transverse coordinates and (d) momenta distribution corresponding to the same final momentum \mathbf{p}_f ^[27].

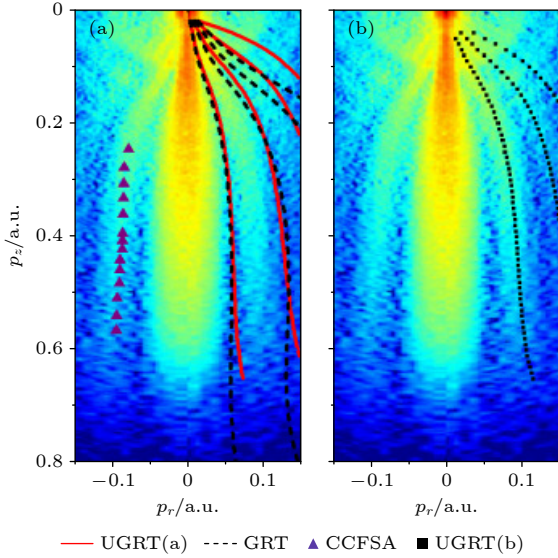


图 5 中红外激光电离氙原子亚稳态光电子动量分布^[13] (a) 红色实线为 UGRT 给出的干涉极小, 黑色虚线为 GRT 给出的干涉极小; (b) 黑色方块为 UGRT 给出的干涉极大^[27] Fig. 5. The momentum distribution of metastable Xe ionized by mid-IR laser field^[13]: (a) Red solid line is the interference minima given by UGRT, black dashed line the minima given by GRT; (b) black squares are the interference maxima given by UGRT^[27].

3.2 正交双色场中的光电子全息

3.2.1 正交双色场中的光电子全息中心亮条纹偏移量

光场较强、用来电离原子的极化方向为 x 方向, 光强较弱的待观测激光脉冲极化方向为 y 或 z 方向 (矢势 \mathbf{A}_L). 第 3 节主要讨论了强场电离光电子能谱干涉条纹的形状以及各条纹的相对位置, 本节主要关注干涉条纹的整体移动. 研究表明, 当末态动量 p_x 较大, 接近直接电离的极限值 $2\sqrt{U_p}$ 的时候, 干涉条纹的整体移动可以使用强场近似理论很好地描述. 因此, 从相位公式 (8) 式和 (9) 式出发, 可以给出直接电离与再散射轨迹的相位差为

$$\Delta S = \frac{1}{2} \int_{t_0^{\text{ref}}}^{t_r} d\tau (\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau))^2 - \frac{1}{2} \int_{t_0^{\text{R}}}^{t_r} d\tau (\mathbf{k} + \mathbf{A}(\tau))^2 + I_p(t_0^{\text{R}} - t_0^{\text{ref}}), \quad (26)$$

其中 t_0^{ref} 表示参考波的隧穿时刻, t_0^{R} 表示再散射波/信号波的隧穿时刻. 研究表明, 垂直方向的弱光对于隧穿以及返回时间的计算影响很小^[21]. 同时, 对于前向散射最终横向动量 \mathbf{p}_\perp 较小的末态, 研究表明有如下关系式成立: $t_0^{\text{R}} \approx t_0^{\text{ref}}$, $k_x \approx p_x$, $\text{Im}(t_r) \approx 0$.

有这些条件, 加上分别对应参考波以及散射波的鞍点方程, 可以将对应前向小角度范围内的相位差简化如下:

$$\begin{aligned} \Delta S &\approx \int_{t_0^{\text{ref}}}^{t_0^{\text{R}}} \left(\frac{1}{2} (p_x + A_x(\tau))^2 + I_p \right) d\tau \\ &\quad + \frac{1}{2} \int_{t_0^{\text{ref}}}^{t_r} ((\mathbf{p}_\perp + \mathbf{A}_\perp(\tau))^2 - (\mathbf{k}_\perp + \mathbf{A}_\perp(\tau))^2) d\tau \\ &= \frac{1}{2} \int_{t_0^{\text{ref}}}^{t_r} (\mathbf{p}_\perp^2 - \mathbf{k}_\perp^2 + 2\mathbf{p}_\perp \cdot \mathbf{A}_\perp(\tau) - 2\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{A}_\perp(\tau)) d\tau \\ &= \frac{1}{2} (\mathbf{p}_\perp^2 - \mathbf{k}_\perp^2) (t_r - t_0^{\text{ref}}) + (\mathbf{p}_\perp - \mathbf{k}_\perp) \cdot \int_{t_0^{\text{ref}}}^{t_r} \mathbf{A}_\perp(\tau) d\tau \\ &= \frac{1}{2} (\mathbf{p}_\perp^2 - \mathbf{k}_\perp^2) (t_r - t_0^{\text{ref}}) + (\mathbf{p}_\perp - \mathbf{k}_\perp) \cdot (-\mathbf{k}_\perp) (t_r - t_0^{\text{ref}}) \\ &= \frac{1}{2} (\mathbf{p}_\perp - \mathbf{k}_\perp)^2 (t_r - t_0^{\text{ref}}), \end{aligned} \quad (27)$$

其中 $\mathbf{k}_\perp = -\frac{1}{t_r - t_0} \int_{t_0}^{t_r} \mathbf{A}_L(t) dt$, 表明在弱光方向也发生了光电子的返回现象. 因此, 考虑到前向小角度范围内的库仑 glory 奇异效应, 在这个范围内光电子的分布为

$$f(p_\perp) \sim J_0^2 \left[b_g \sqrt{(p_y - p_{y,L})^2 + (p_z - p_{z,L})^2} \right]. \quad (28)$$

可以发现, 光电子全息动量谱干涉结构整体偏移量为

$$\mathbf{p}_L = \text{Re}(\mathbf{k}_\perp). \quad (29)$$

图 6 中, 极化 x 方向的强光波长为 800 nm, 光强为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 极化 y 方向的弱光波长为 1600 nm, 光强为 $2.4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. 强光与弱光之间的时间延迟为零 ($\Delta\tau = 0$). 图 6 给出了不同末态 (p_x 值) 时沿弱光方向横向动量的分布, 与含时薛定谔方程 (TDSE) 理论计算的结果符合得很好, 尤其是 p_x 较大时.

3.2.2 光电子全息提取超短脉冲时间构型

从 3.2.1 节的讨论可知, 增加一束垂直弱光可以在参考波与信号波的相位差中引入额外的因子. 因此, 可以利用亚周期再散射过程作为时间门来对激光脉冲的时间信息进行采样. 具体操作如下: 在弱光与电离强光之间引入时间延迟 $\Delta\tau$, 那么干涉条纹的整体移动变为

$$\mathbf{p}_L(\Delta\tau) \approx \text{Re} \left\{ -\frac{1}{t_r - t_0} \int_{t_0 + \Delta\tau}^{t_r + \Delta\tau} \mathbf{A}_L(t) dt \right\}. \quad (30)$$

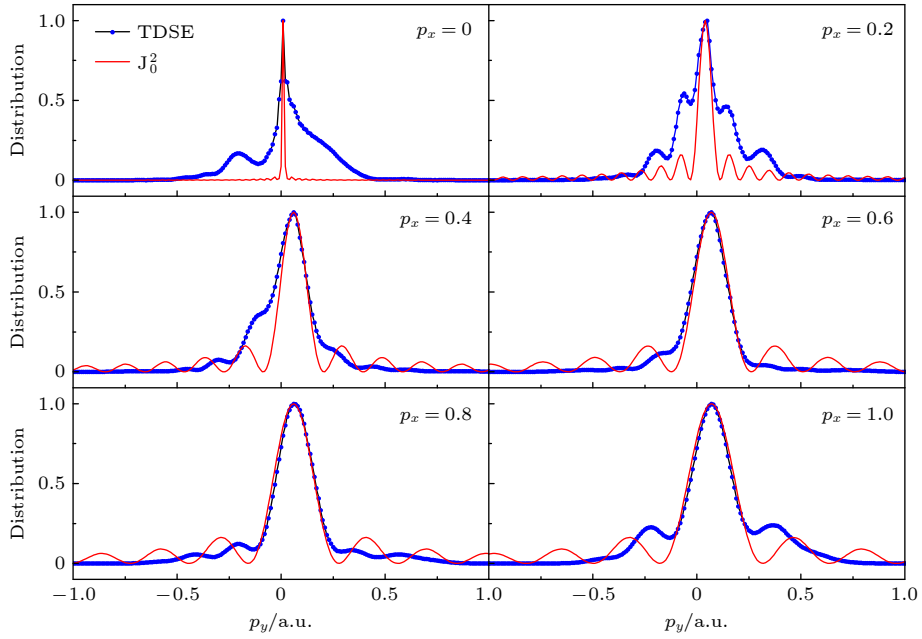


图 6 对应不同的 p_x 动量最终沿 y 方向的横向动量分布, 时间延迟为零. p_z 方向的 TDSE 结果已经积分掉了. 蓝色点线表示 TDSE 计算结果, 红色实线是零阶贝塞尔函数结果

Fig. 6. Transversal momentum distribution for different p_x with time delay $\Delta\tau = 0$. Momentum p_z direction for the TDSE results has been integrated. Blue dotted lines represent the TDSE results, red lines are fitted squared zero Bessel function.

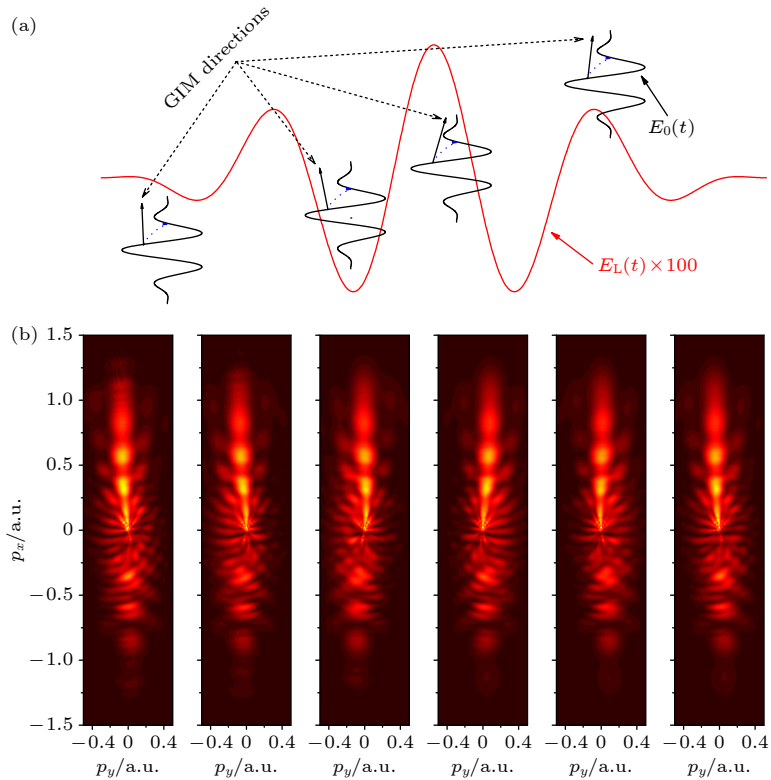


图 7 (a) 通过 glory 再散射时间快门对待测场进行时间采样示意图, 蓝色虚线表示隧穿电子的亚周期运动; (b) 不同时间延迟下 TDSE 理论模拟的光电子动量谱^[23].

Fig. 7. (a) Illustration of the sampling of a test laser field with the Coulomb glory rescattering process. Blue dashed arrows indicate the subcycle excursion of the tunneled electrons. (b) Integrated photoelectron momentum distribution simulated using the TDSE with different time delays^[23].

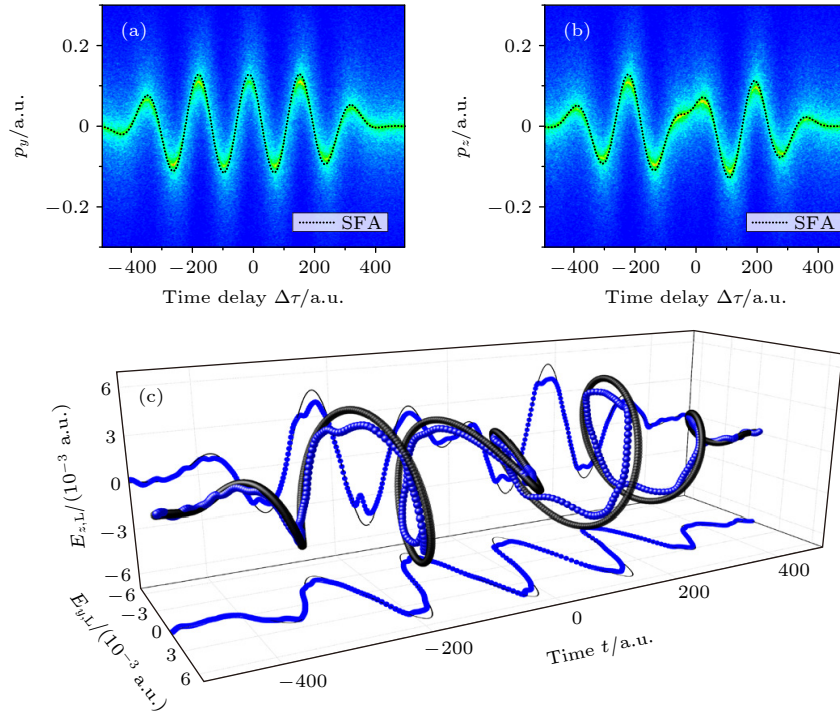


图 8 (a), (b) 待测光为椭圆率随时间变化的复杂光脉冲下的 y 与 z 方向动量分布与时间延迟的关系图; (c) 提取出的电场形状的三维展示 (蓝色球体), 结果与精确的合成波形进行了对比 (黑色球体)^[23]

Fig. 8. (a), (b) Streaking photoelectron momentum spectra for two independent polarization directions of the synthesized test laser light with time-varying ellipticity ($p_x = 0.8$); (c) three dimensional representation of the extracted electric field (blue spheres). The result is compared to the synthesized waveform (black spheres)^[23].

图 7 给出了不同时间延迟下光电子全息干涉结构的变化, 可以很明显地看出干涉第一极大随着 $\Delta\tau$ 的变化而变化。

对 (30) 式两边关于时间延迟 $\Delta\tau$ 做傅里叶变换, 可得以下关系式:

$$\tilde{p}_L(\omega) = \tilde{A}_L(\omega) \frac{a(\omega) + a^*(-\omega)}{2}, \quad (31)$$

其中

$$\tilde{A}_L(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} A_L(t) e^{-i\omega t} dt,$$

$$\tilde{p}_L(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} p_L(\Delta\tau) e^{-i\omega \Delta\tau} d\Delta\tau$$

是各自对应的频域函数。

另外, $a(\omega) = -\int_{t_0}^{t_r} e^{i\omega t'} dt' / (t_r - t_0)$. 再变换回时间域, 那么可以得到弱光电场的时间构型为

$$E_L(t) = \frac{1}{i\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\omega \tilde{p}_L(\omega)}{a(\omega) + a^*(-\omega)} e^{i\omega t} d\omega. \quad (32)$$

从以上的讨论可以看出, 只要变化电离强光与待观测弱光之间的时间延迟, 通过测量沿弱光极化方向光电子全息干涉结构的整体移动, 就可以提取

出待测弱光的时间构型^[23].

图 8(a) 和图 8(b) 给出了两个独立极化方向的光电子动量谱, 待测弱光电场由相对旋转的两束圆极化超短脉冲合成而成:

$$\mathbf{E}_l = \epsilon_L f_L \left(t - \frac{t_d}{2} \right) \left[\cos \left(\omega_L t + \frac{\pi}{4} \right) \hat{y} + \sin \left(\omega_L t + \frac{\pi}{4} \right) \hat{z} \right],$$

以及

$$\mathbf{E}_r = \epsilon_L f_L \left(t + \frac{t_d}{2} \right) \left[\cos \left(\omega_L t + \frac{\pi}{4} \right) \hat{y} - \sin \left(\omega_L t + \frac{\pi}{4} \right) \hat{z} \right].$$

这样一个复杂的矢量光场, 同样可以使用上述方法同时提取出两个方向的电场构型. 在频率域, 有关系式 $\tilde{p}_L(\omega) = r(\omega) \tilde{A}_L(\omega)$ 成立, 频率响应函数 $r(\omega)$ 在大部分范围内约等于一个单位, 因此本文的提取方法同样适用于用来提取波形更加复杂、频谱宽度更大的超短光脉冲的时间构型, 对于超快激光的表征具有重要的意义。

4 结 论

本文讨论了强场光电子全息的基本概念, 通过强场近似的处理手段, 给出了光电子轨迹干涉作为

其主要机制的物理图像. 进一步地, 考虑到存在无数条不同的光电子轨迹对应同一个末态动量, 参照 Berry 的一致性近似处理方法, 给出了处理所谓库仑 glory 奇异的一致性 glory 再散射理论. 这一方法从第一性原理出发, 将库仑势的作用合理地纳入理论推导中, 最后给出了与实验符合得很好的结果. 因此, 这一方法可以用来作为未来研究强场电离过程库仑作用的一个重要的基础出发点. 基于一致性 glory 再散射理论, 对比了实验结果, 得到了很好的效果. 同时, 使用库仑 glory 再散射过程做为时间快门, 用它来给超短超快光脉冲进行时间域采样, 进而提出了从实验中测量复杂形式超短脉冲时间构型的手段, 这一方法对推动超短中红外脉冲的表征具有重要的意义. 本文的研究对未来强场光电子全息的基本理论以及实验提供了可行的方向以及借鉴.

参考文献

- [1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [2] Paulus G G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [3] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [4] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
- [5] Krausz F 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [6] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Auge F, Balcou Ph, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [7] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G. A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [8] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Worner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [9] Krueer W 2019 *The Physics Of Laser Plasma Interactions* (Boca Raton: CRC Press) pp11,12
- [10] Goulielmakis E, Yakovlev V. S, Cavalieri A. L, Uiberacker M, Pervak V, Apolonski A, Kienberger R, Kleineberg U, Krausz F 2007 *Science* **317** 769
- [11] Krausz F, Stockman M I 2014 *Nature Photonics* **8** 205
- [12] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [13] Huismans Y, Rouzee A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Lognan P S W M, Lepine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, van der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Yu, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
- [14] Haertelt M, Bian X B, Spanner M, Staudte A, Corkum P B 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 133001
- [15] Bian X B, Huismans Y, Smirnova O, Yuan K J, Vrakking M J J, Bandrauk A D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043420
- [16] Du H C, Wu H M, Wang H Q, Yue S J, Hu B T 2016 *Opt. Lett.* **41** 697
- [17] Meckel M, Staudte A, Patchkovskii S, Villeneuve D M, Corkum P B, Dorner R, Spanner M 2014 *Nat. Phys.* **10** 594
- [18] Wiese J, Onvlee J, Trippel S, Küpper J 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 013089
- [19] He M, Li Y, Zhou Y M, Li M, Cao W, Lu P X 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 133204
- [20] Kang H P, Maxwell A S, Trabert D, Lai X Y, Eckart S, Kunitski M, Schoffler M, Jahnke T, Bian X B, Dorner R, de Morisson Faria C F 2020 *Phys. Rev. A* **102** 013109
- [21] Tan J, Zhou Y M, He M R, Chen Y B, Ke Q H, Liang J T, Zhu X S, Li M, Lu P X 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 253203
- [22] Li M, Xie H, Cao W, Luo S Q, Tan J, Feng Y D, Du B J, Zhang W Y, Li Y, Zhang Q B, Lan P F, Zhou Y M, Lu P X 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 183202
- [23] Tao J F, Cai J, Xia Q Z, Liu J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 043416
- [24] Willenberg B, Maurer J, Mayer B W, Keller U 2019 *Nat. Commun.* **10** 5548
- [25] Tao J F, Xia Q Z, Cai J, Fu L B, Liu J 2017 *Phys. Rev. A* **95** 011402
- [26] Ford K W, Wheeler J A 1959 *Ann. Phys.* **7** 259
- [27] Liao L G, Xia Q Z, Cai J, Liu J 2022 *Phys. Rev. A* **105** 053115
- [28] Milosevic D B 2017 *Phys. Rev. A* **96** 023413
- [29] Gutzwiller M C 1967 *J. Math. Phys.* **8** 1979
- [30] Berry M V 1969 *Sci. Prog.* **57** 43
- [31] Berry M V 1969 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **2** 381
- [32] Xia Q Z, Tao J F, Cai J, Fu L B, Liu J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 143201

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Theory and application of photoelectron trajectory interference holography for atomic ionization in intense laser field*

Tao Jian-Fei¹⁾ Xia Qin-Zhi²⁾ Liao Lin-Gu³⁾

Liu Jie^{4)†} Liu Xiao-Jing^{1)‡}

1) (*Center for Transformative Science, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

2) (*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

3) (*School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China*)

4) (*Graduate School of China Academy of Engineering Physics, Beijing 100193, China*)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 25 July 2022)

Abstract

The rescattering scenario that the ionized photoelectron is guided back to the vicinity of the atomic core under an oscillating laser field is the key to understanding strong field processes. Strong field photoelectron holography, which stems from the interference of direct and rescattering waves, has great potential applications in studying strong field physics and detecting ultrafast electron dynamics. The article develops the underlying quantum orbits interference picture. By including Coulomb potential, the uniform glory rescattering theory is introduced, which gives reasonably quantitative results in accord with time-dependent Schrödinger equation and experimental results. And reconstructing the ultrashort light pulses in the time domain with the Coulomb glory temporal gate is also studied. Deepening the understanding of strong field photoelectron holography will lead to further enlightening in ultrafast physics and contribute to future applications.

Keywords: tunneling ionization, strong field holography, Coulomb glory effect, two-color laser field

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz, 33.80.Rv

DOI: 10.7498/aps.71.20221296

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574020, 11775030, 11974057) and the Joint Fund of the National Natural Science Foundation of China and the China Academy of Engineering Physics (Grant No. U1930403).

† Corresponding author. E-mail: jliu@giscaep.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn



强激光场原子电离光电子轨迹干涉全息理论及应用

陶建飞 夏勤智 廖临谷 刘杰 刘小井

Theory and application of photoelectron trajectory interference holography for atomic ionization in intense laser field

Tao Jian-Fei Xia Qin-Zhi Liao Lin-Gu Liu Jie Liu Xiao-Jing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233206 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221296

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221296>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

反向旋转双色椭偏场中原子隧穿电离电子的全息干涉

Photoelectron holography in tunneling ionization of atoms by counter-rotating two-color elliptically polarized laser field

物理学报. 2022, 71(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212226>

高频激光脉宽对原子光电子发射谱的影响

Pulse duration effect on photoelectron spectrum of atom irradiated by strong high frequency laser

物理学报. 2018, 67(7): 073202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172440>

Ar原子序列双光双电离产生光电子角分布的理论计算

Theoretical calculations on photoelectron angular distribution of sequential two-photon double ionization for Ar atom

物理学报. 2020, 69(5): 053201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191814>

反旋双色椭偏场中Ar非次序双电离电子关联的强度依赖

Intensity-dependent electron correlation in nonsequential double ionization of Ar atoms in counter-rotating two-color elliptically polarized laser fields

物理学报. 2022, 71(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221044>

利用双色激光场下阈上电离谱鉴别两种不同分子构型

Identifying two different configurations of the by the direct above-threshold ionization spectrum in two-color laser field

物理学报. 2020, 69(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200013>

Ar原子和K⁺离子序列双光双电离光电子角分布的非偶极效应

Non-dipole effects on angular distribution of photoelectrons in sequential two-photon double ionization of Ar atom and K⁺ ion

物理学报. 2022, 71(6): 063201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211905>

专题: 阿秒物理

基于相对论自由电子的量子物理*

李靖 刘运全†

(北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2022年6月30日收到; 2022年7月18日收到修改稿)

光和物质的相互作用是物理学中一个基础研究领域. 电子是最早被发现组成物质的基本粒子, 因此电子与光场(光子)的相互作用很早就引起人们的研究兴趣. 电子分为束缚电子与自由电子. 束缚电子系统的跃迁会受到能级固定、选择定则等约束, 自由电子则不然. 近十多年来, 随着超快电子显微镜技术的发展, 人们提出并发展了用于描述量子自由电子(电子波包)和光场相互作用的理论——基于光子诱导近场电子显微成像过程, 成功展示了许多新奇量子效应以及新应用. 目前, 人们把光子诱导近场电子显微拓展量子光学中并展示了许多新奇现象, 包括自由电子和腔光子的纠缠、自由电子和自由电子的纠缠、自由电子量子比特、新奇光量子态制备等, 从而开启了基于自由电子的“量子光学”时代. 本文首先概述了电子与光子的相互作用研究, 随后综述了光子诱导近场电子显微成像的理论、实验进展, 介绍了其应用场景. 最后, 我们对基于自由电子的量子物理研究目前遇到的困难进行了总结, 并对未来发展进行了展望.

关键词: 光子诱导近场电子显微成像, 自由电子, 量子光学, 时间分辨成像**PACS:** 42.50.Hz, 03.65.-w, 41.75.Fr, 42.50.-p**DOI:** 10.7498/aps.71.20221289

1 引言

光和物质的相互作用是物理学中一个古老且长盛不衰的研究领域. 电子是组成物质的基本粒子之一, 光子是电磁辐射的基本单位. 由于它们分别是费米子和玻色子的代表粒子, 在量子力学建立初期, 人们就已经开始研究二者的相互作用^[1,2].

光与电子的相互作用受电子所处环境的影响. 电子所处的环境通过势能分布描述, 根据薛定谔方程的势能项 $V(r, t)$ 是否为零, 可以将其分为束缚电子和自由电子. 束缚电子, 指受到库仑势限制的电子, 这种限制起源于正电荷对电子的吸引力. 由于势能项的存在, 束缚电子能级往往是分立的、有限的, 只有特定能量量子态才能存在^[1]. 激子系统^[3]、原子能级跃迁系统^[4-6]和量子点与量子阱系统^[2]就是典型的束缚电子系统. 不同系统势能项 $V(r, t)$

的形式差异, 造就了这类系统和光场相互作用中很多新奇的物理现象, 目前已经有全面而深刻的综述回顾了电磁场和束缚电子系统的相互作用^[7]. 自由电子是指薛定谔方程中势能项 $V(r, t) = 0$ 的电子. 广义地说, 金属、掺杂半导体、等离子体中的电子都可视为自由电子^[2]. 在非相对论近似下常采用“自由电子气”模型来描述这类自由电子^[8]. 当自由电子以接近光速运动时, 其动力学过程应采用狄拉克方程描述, 这种电子被称为相对论自由电子.

本文主要涉及相对论性自由电子和光场的相互作用. 在半个多世纪以前, 人们就已经开始探究如何耦合自由电子和光场, 如在卡皮查-狄拉克效应(Kapitza-Dirac effect)中, 自由电子被光学波段的驻波弹性散射, 经历等虚光子数的吸收/受激发射过程^[9]. 当吸收光子和发射光子的能量不同时, 频率发生上转换或下转换.

自由电子的相干辐射是光场和自由电子相互

* 国家重点研发计划(批准号: 2022YFA1604301)和国家自然科学基金(批准号: 92050201, 92250306)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

作用研究的一个方面,也是自由电子激光 (free electron laser, FEL) 的基本原理. 然而自由电子对单光子的散射是十分微弱的, 定量地说, 对于可见光波段汤姆孙散射截面仅有 10^{-29} m^2 [10]. 同时, 电子辐射需满足辐射光子和电子间的能量、动量匹配. 切伦科夫辐射 (Cherenkov radiation, CR) 和史密斯-普塞尔辐射 (Smith-Purcell radiation, SPR) 是最主要的两种自由电子相干辐射. CR 是一种激波辐射, 需要电子的运动速度超过光的相速度 [11–19]. 在真空中由于光子和电子动量不匹配, 无法发生 CR. SPR 及其推广是利用具有周期性结构的光栅匹配光子和电子的能量、动量, 靠近光栅结构的自由电子被局域模式非弹性散射, 释放出高频光子, 因此这种辐射也被作为紫外甚至 X 光波段新型光源的候选者 [20–31].

利用自由电子成像近场是光场和自由电子相互作用研究的另一方面. 为了探究近场的动力学, 人们发展了空间分辨率突破衍射极限的近场显微镜, 然而这种显微镜无法提供原子层面的电子动力学显微 [32]. 超快电子透镜 (ultrafast electron transmission microscopy, UTEM) 的问世, 使得在时间、空间上成像微纳尺度的动力学成为可能. 2009 年, Barwick 等 [33] 利用 UTEM 探究了自由电子脉冲与光场激发的碳纳米管近场倏逝波相互作用的动力学过程. 揭开了光子诱导近场电子显微术 (photon induced near-field electron microscopy, PINEM) 理论及其实验发展的序幕.

在首次发现 PINEM 现象的实验中, 作者希望利用近场来增强电子显微镜的显微效果. 后来发现, PINEM 可以更广泛地视为自由电子与耦合到材料上的强场相互作用的过程. 由于在该过程中自由电子被描述为量子电子波包 (quantum electron wavepacket, QEW), 而不是经典带电粒子, 且该过程本质上是一种受激非弹性电子-光散射 (inelastic electron-light scattering, IELS), 电子波函数在与近场相互作用后, 会受到一个正弦型的相位调制. 因此, 也可以认为 PINEM 是利用近场来塑造自由电子波函数的过程. 最近, 为了研究自由电子在量子信息方面的应用, 人们将光场进行量子化进一步发展了全量子 PINEM 理论, 即量子 PINEM (quantum-PINEM, Q-PINEM) [34–49]. 在所谓宏观量子电动力学 (macroscopic QED, M-QED) 的理论框架下 [7,50,51], Q-PINEM 是目前描述光和自由

电子相互作用最精确的理论. 近场模式往往由光脉冲激发材料产生, 在 M-QED 中, 这些满足介质中的麦克斯韦方程组的模式被以“光学准粒子 (photonic quasiparticles, PQs)”的形式统一描述. 这种描述不仅适用于近场, 还可描述包括声子极化激元 (phonon-polariton, PhP)、甚至磁场等这些不是由光激发的场分布. 因此, 总的来说 PINEM 实际上涉及自由电子、PQs 以及材料样品的相互作用, 其中材料给出边界条件以及作为 PQs 的媒介. 在这个过程中, 自由电子吸收或者辐射出多个光子. 相互作用结束后, 通过分析电子的损失能谱 (electron energy loss spectrum, EELS), 不仅可以实现实空间成像, 也可以实现倒空间成像, 特别是使得以亚原子尺度的分辨率成像被激发样品的近场分布成为可能. 截至目前, PINEM 已经可以实现 1 nm 空间分辨率 [52]、 μeV 能量分辨率 [52] 以及 10^2 fs 时间分辨率 [53–55], 进而可以直接测量近场模式寿命、模式体积等.

本文首先介绍相对论自由电子的量子物理的实验平台 (PINEM), 综述 PINEM 相关的理论和实验工作进展; 随后介绍 PINEM 在各领域中的应用; 最后讨论基于自由电子的量子物理目前面临的挑战, 提出展望.

2 PINEM 实验平台、理论研究进展

2.1 PINEM 实验平台

PINEM 的典型实验装置与实验原理如图 1 所示. PINEM 的实验平台主要基于 UTEM 装置 [56]. UTEM 是一种时间分辨电子显微镜, 它在电子显微镜具有超高空间分辨成像能力的基础上引入了第四维度——时间 [57], 因此也被称为四维 (4D) 电子显微镜.

UTEM 的工作方式基于超快激光泵浦-超快电子束探测, 使用飞秒激光激发样品, 随后以电子脉冲作为延时探针探测样品的瞬态物理过程. 为此, 需要将激光器产生的脉冲分成两束, 分别激发样品和激发阴极光电子发射. 用于激发样品的超快激光脉冲常需经过光参量放大 (optical parametric amplification, OPA) 过程, 对泵浦激光进行调谐, 并进一步压缩脉冲使得脉冲持续时间更短; 为了激发光电子, 通常需要利用倍频过程将光电子激发脉冲转化到紫外频率. 超快电子脉冲和激光脉冲之间

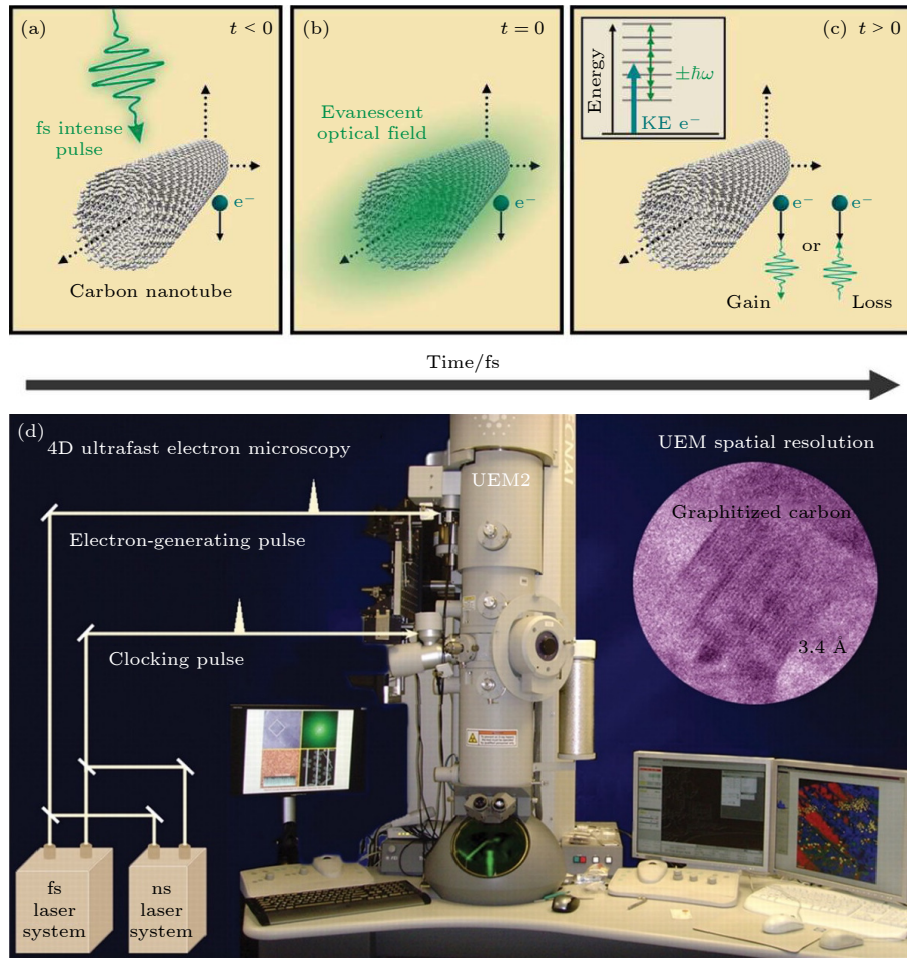


图 1 电子、光子和倏逝场相互作用的物理描述^[33]及实验装置^[56] (a) 飞秒激光脉冲到达前 ($t < 0$), 电子就已经过纳米管时的情况, 目前二者还没有发生时空重叠; (b) QEWF、飞秒激光脉冲和倏逝场在碳纳米管上具有最大重叠时 ($t = 0$); (c) 在相互作用期间和随后瞬间 ($t > 0$), 电子获得/失去的能量等于单光子能量的整数倍. 插图是在飞秒激光脉冲中成像电子和光子之间的自由-自由跃迁, 在连续体中可能的最终能量. KE 表示动能; (d) UTEM 实验装置的实物图

Fig. 1. Physical depiction of the interaction among the electron, photon, and the evanescent field^[33], and the picture of experimental set-up^[56]. (a) A frame when the electron packet arrives at the nanotube before the femtosecond laser pulse ($t < 0$), no spatial-temporal overlap has yet occurred. (b) The precise moment when the electron packet, femtosecond laser pulse, and evanescent field are at maximum overlap at the carbon nanotube. (c) Illustration of the process during and immediately after the interaction ($t > 0$) when the electron gains/loses energy equal to integer multiples of femtosecond laser photons. Inset, the possible final energies in the continuum due to the free-free transitions between the imaging electron and the photons in the femtosecond laser pulse. KE, kinetic energy. (d) Photograph of the UTEM.

的延迟, 可通过调节两个脉冲之间的延迟线来精确控制. 阴极发射的电子脉冲经过加速和准直等过程入射到样品表面与近场相互作用. 相互作用完成后, 电子波函数在能量空间中的分布发生了变化, 利用 EELS 可以分析这种变化. 通过 EELS 系统的能量滤波, 对相互作用后能量发生增益的电子进行成像, 得到的 PINEM 能谱就能反映纳米结构或界面周围被激发近场的强度和拓扑结构^[54,57]. 基于相对论自由电子的 EELS, PINEM 可以探测样品内部的光场^[55]. 因此 PINEM 是对其他超高空间分辨成像方式, 如扫描近场显微镜 (scanning near-

field optical microscopy, SNOM)^[58,59]、光电子发射显微镜 (photon-emission electron microscopy, PEEM)^[60,61]、时间分辨的光子隧道显微镜 (time-resolved photon tunneling microscopy, TR-PTM)^[62]、阴极发光显微镜 (cathodoluminescence microscopy, CM)^[63] 的重要补充.

2.2 PINEM 的理论进展

Garcia 等^[64] 及 Park 等^[65] 于 2010 年分别提出了解释 PINEM 实验结果的两套等价理论. Garcia 等^[64] 采用量子散射方法, 将相互作用后的电子波

函数按散射阶展开, 每个散射阶分解为具有未知系数的动量本征函数的线性组合. 通过考虑相互作用哈密顿量和格林函数的传播, 将单个散射事件中的 N 阶项与 $N + 1$ 阶项联系起来. 这样, 系数之间就建立了递归关系, 可以递归地计算; Park 等^[65] 则给出了描述该过程的含时薛定谔方程的解, 得到了电子的波函数解析式. 利用电子的波函数解析式, 可以分析相互作用及随后自由演化过程中电子的状态; 在探索 PINEM 应用时, 使用解析解的形式会方便很多. 值得注意的是, PINEM 实验是基于相对论自由电子的, 因此严格来说, 应该考虑相对论效应, 采用狄拉克-泡利方程来描述电子的状态演化, 然而这两种理论都忽略了相对论效应.

在电子显微镜的典型工作条件下 (即电子动能 E_0 约为 40—300 keV, 速度 v 约为 $0.5c$ — $0.7c$), 电子的相对论效应 (特别是电子的自旋修正) 是否会对 PINEM 的实验产生显著影响是上述两个理论工作没有完全解答的问题. 2012 年, Park 和 Zewail^[66] 从狄拉克方程出发, 建立了一套电子-光子-纳米结构相互作用的 PINEM 理论, 并且和非相对论形式进行了比较. 由于此时电子波函数中包含有高频项 ($|+\omega^+| = |-\omega^-| \geq mc^2/\hbar$), 利用高频近似可以对狄拉克方程进行解析求解到第一阶, 求解过程中忽略了波包的色散和有质相互作用. 在典型的 PINEM 相互作用时间尺度下, 忽略波包的色散 (即 QEWS 的包络函数对空间的二阶导数)(\sim fs) 是合理的; 另一方面, 由于 PINEM 实验中电子的辐射效应非常小, 因此忽略有质相互作用也是合理的. 在这些近似下, 只需将电子的相对论速度及相应的经典动量 ($\hbar k_c$)、经典能量 ($\hbar \omega_c$) 代入非相对论 PINEM 理论给出的公式中, 就可以得出与狄拉克方程的一阶近似精确等价的解.

Park 和 Zewail^[66] 给出的 PINEM 理论的解析解表明, PINEM 场耦合了自由电子的运动和光场. PINEM 场通常被定义为

$$g\left(\frac{\omega_p}{v_e}\right) \equiv \frac{e}{2\hbar\omega_p} \int_{-\infty}^{+\infty} dz'' E_z(z'', 0) \times \exp\left[-i\left(\frac{\omega_p}{v_e}\right)z''\right], \quad (1)$$

其中, e 是基本电荷量; ω_p 代表光子的频率; v_e 代表电子的运动速度; E_z 是电场在电子运动方向 (设为 z 方向) 的分量; $\Delta k = \omega_p/v_e$ 对应于以 v_e 运动的

电子和光子相互作用过程中得到或者失去能量 $\hbar\omega$ 后, 电子的动量改变, 其单位与空间频率一致. 从 (1) 式可以看出, g 因子是关于近场纵向分量 E_z 空间频率为 Δk 的傅里叶分量, 表征了自由电子和光场整体的耦合强度, 后续 PINEM 的理论发展基本沿用了“PINEM”场的形式, 并将其称作耦合系数或者拉比参数^[53]. 根据耦合系数, 可以计算出自由电子吸收/发射 N 个光子的概率:

$$P_N(|g|) = J_N^2(2|g|), \quad (2)$$

其中, J_N 是第一类贝塞耳函数的第 N 阶. 在 $|g| \gg 1$ 的极限下, 相互作用后, 电子能谱的展宽约为单光子能量的 $4|g|$ 倍. 实验中 $|g| \gg 1$ 很容易满足, 因此耦合系数的大小可以通过 EELS 能谱的展宽反推出来.

2015 年, Feist 等^[67] 和 Kociak^[68] 利用纳米针尖作为样品实现了皮秒 (约 3.4 ps) 量级的近场持续时间. 当近场持续时间远大于电子脉冲持续时间 (实验中典型值约 700—900 fs) 时, 可以观察到由激光功率调制的相干布居 Rabi 振荡 (Rabi oscillation, RO), 这再次证明了 PINEM 是一个量子过程, 必须对自由电子采用量子波包的描述. 如图 2 所示, 纳米尖端光电发射产生的超短电子脉冲被加速并聚焦, 与纳米结构的光学近场发生相互作用, 电子脉冲的相位将被调制; 从动能角度看, 在电子和近场相互作用的过程中, 电子只能吸收或者发射整数个光子, 因此其能量空间中, 以初始能量 E_0 (具有一定宽度) 为原点, 形成了以单光子能量 $\hbar\omega$ 为间隔的“能量阶梯”, 在电子能谱中则呈现出相对于零损耗峰 (zero loss peak, ZLP) 等间隔分布的边带, 边带 $E_0 \pm n\hbar\omega$ 称为第 n 光子阶, 表明 PINEM 可以用于演示自由电子“量子行走”. 电子获得能量 $\hbar\omega$ 的结果可能是直接吸收一个光子导致的, 也可能是连续吸收两个光子, 随后又放出一个光子导致的, 这两个量子路径之间会发生量子干涉. 路径量子干涉以及多级布居转移引起了多能级 RO 现象. Feist 等^[67] 采用对易的阶梯算符描述 PINEM, 得到了和实验符合的结果. 相较于之前解释 PINEM 的理论, 阶梯算符描述更加简洁, 物理图像更加清晰.

当近场与自由电子发生强耦合时, 会有更多新奇的现象产生, 这意味着更广阔的应用. 因此, 探索如何增强近场和自由电子的相互作用, 是近期 PINEM 研究的一条主线. 通过增加激发样品的

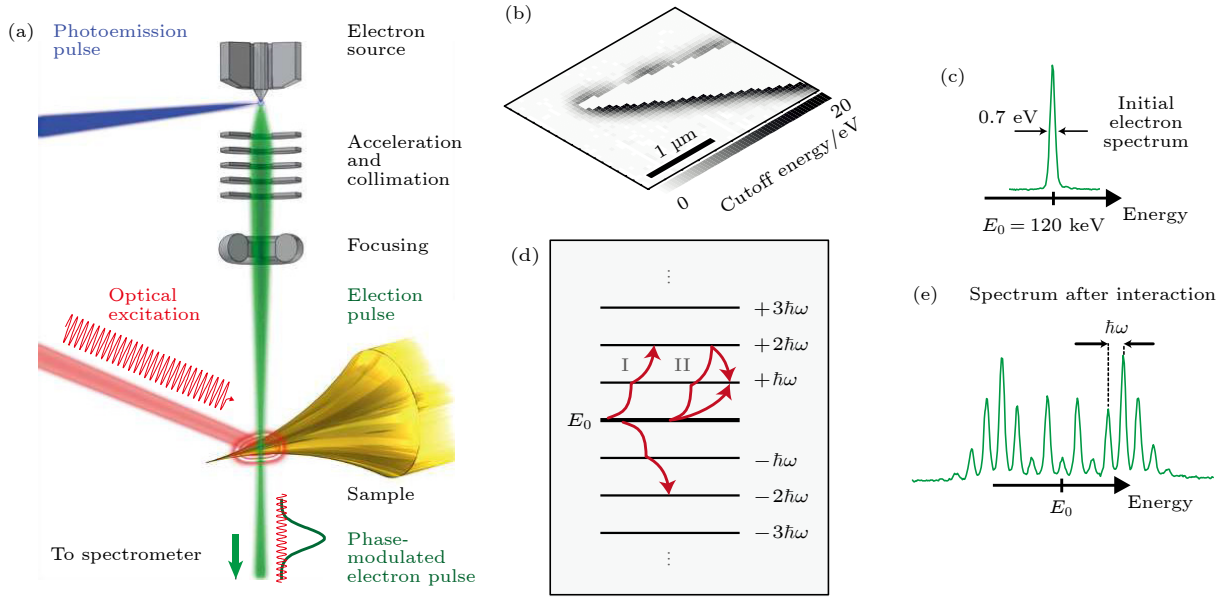


图 2 光学近场相干非弹性电子散射原理与示意图^[67] (a) 实验示意图; (b) 非弹性电子散射谱中能量截断的光栅扫描图像; (c) 入射动能谱, 峰位于 $E_0 = 120$ keV, 其半高全宽 (full-width at half-maximum, FWHM) 为 0.7 eV; (d) 梯状能级图, 箭头表示连续的多态布居转移 (类型 I) 和量子干涉路径 (类型 II); (e) 近场相互作用后的能谱示例

Fig. 2. Schematic and principles of coherent inelastic electron scattering by optical near-fields^[67]: (a) Experimental scheme; (b) raster-scanned image of the energy cutoff in the inelastic electron scattering spectra; (c) incident kinetic energy spectrum (full-width at half-maximum, 0.7 eV) centered at $E_0 = 120$ keV; (d) energy level diagram of ladder states, arrows indicate sequential multistate population transfer (type I) and interfering quantum paths (type II); (e) example of kinetic energy spectrum after the near-field interaction.

激光功率可以增大耦合强度, 但是激光功率过大可能会对样品造成不可逆损伤, 影响实验可信度. 考虑到之前的 PINEM 实验都是自由电子和局域近场的相互作用, 为了进一步增大耦合强度, 可以将局域近场改为行波, 该过程将需要满足相位匹配. 由于相对论电子的速度与在介质中行波的相速度相接近, 实现相位匹配比较容易. 2020 年, Kammer 等^[69] 将局域 PINEM 场的概念推广到了扩展的 PINEM 场, 给出了自由电子与棱镜全内反射倏逝波相互作用的 PINEM 场解析表达式. 理论计算和实验表明, 在相位匹配的条件下, 自由电子与行波相互作用可以有效地增强耦合. 扩展的 PINEM 场定义为

$$g\left(\frac{\omega_p}{v_e}, T\right) = \frac{e}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_z(z, T + z/v_e) e^{-i\omega_p z/v_e} dz, \quad (3)$$

相比于 (1) 式, 扩展的 PINEM 场依赖于时间 T , 它表示在自由电子的轨迹上, 行波光场会随着时间变化.

在满足相位匹配的条件下, 自由电子和光场之间的能量交换效率可以通过延长相互作用长度而增加. 因此, 理论上即使是单光子的效应也可以在

传播过程中形成相干性, 并接近强耦合. 2019 年, Kfir^[35] 从理论上研究了单电子-单光子的强耦合效应, 将 PINEM 扩展到了 Q-PINEM. 利用量子光学描述, 即相干态 $|\alpha\rangle$ 来表示经典光场, 引入新的参数 g_{Qu} 来表示单电子-单光子耦合强度, 给出了电子-腔光子纠缠相互作用的解析模型. 该模型中定义的耦合系数和传统的 PINEM 理论中的耦合系数的关联为

$$g = g_{\text{Qu}}\alpha, \quad (4)$$

由于在量子光学中, $|\alpha|^2$ 表示光场的平均光子数 \bar{n} , 因此直觉上可将 g_{Qu} 解释为单个光子的 PINEM 效应强度. Kfir^[35] 指出, 虽然强耦合的判据为 $g_{\text{Qu}} \geq 1$, 但是在中度耦合中, 已经出现了一些强耦合现象, 如多个量子的能量转移等. 通过理论推导, Kfir 证实了无论是对于强耦合还是弱耦合, 有无激光泵浦 (无激光泵浦时, 电子和腔真空态相互作用), 电子能谱总是满足 $E_0 - \langle E \rangle = |g_{\text{Qu}}|^2$. 即电子能量损失谱的中心总是偏离 ZLP 的位置, 只是在耦合极弱的情况下偏移不明显. 图 3(a), (b) 所示分别为强耦合情况下 ($g_{\text{Qu}} = 3$) 腔处于真空态 $|0\rangle$ 、相干态 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 时, 电子-光子联合概率 $|c_{n,k}|^2$ 随电子单光

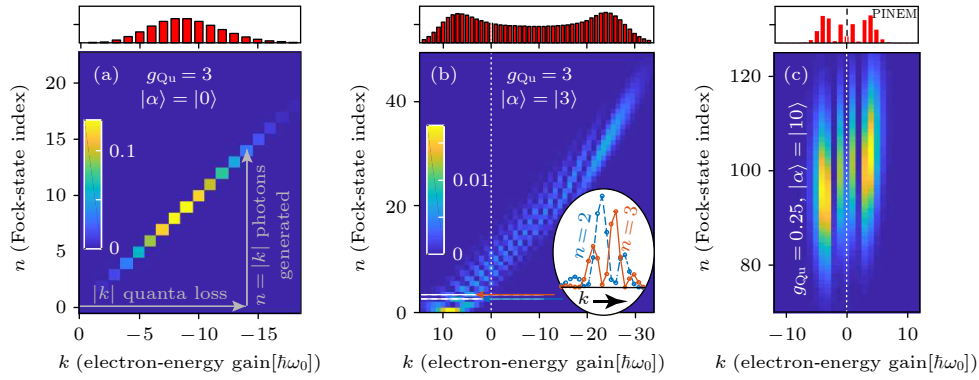


图3 电子和光子的纠缠模式^[35] (a) 腔处于真空态时; (b) 腔处于相干态 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 时出现了丰富的纠缠现象; (c) 腔处于 $|\alpha\rangle = |10\rangle$ 且 $g_{Qu} = 0.25$ 时的弱耦合情况

Fig. 3. Electron-photon entanglement patterns^[35]: (a) When the cavity is in a vacuum state; (b) rich entanglement features for an initial coherent state $|\alpha\rangle = |3\rangle$ in the cavity; (c) weak coupling and highly populated cavity ($g_{Qu} = 0.25$, $|\alpha\rangle = |10\rangle$).

子能量增益 k 以及腔光子数 n 的变化, 其中插图给出了 $n = 2$ 和 $n = 3$ 的状态. 首先考虑的是自由电子和空腔的相互作用, 此时光学腔处于真空态, 自由电子与之相互作用后, 电子将以 $\hbar\omega_0$ 为能量子, 改变动能, 并且其能量损失谱中心位于 $-|g_{Qu}|^2$ 处, 更高阶的光子态需要更强的耦合. 其次, 腔中存在少量光子的状态, 即处于 $|\alpha\rangle = |3\rangle$ 态时腔中会出现丰富的纠缠特征, 如当微腔处于某一个具体的光子数态时, 电子的能谱会发生振荡 (如图3中的插图所示). 对于积分电子能谱而言, 这种振荡会由于 Fock 态的正交而消失. 最后, 考虑弱耦合. $\alpha = 10$, $g_{Qu} = 0.25$ 时的电子能谱如图3(c)所示, 此时 $|c_k|^2 = |J_k(2|g|)|^2$ 且 $|g| = |g_{Qu}\alpha|$, 电子态几乎已经独立于光子态, 出现了以贝塞尔函数形式振荡的电子谱, 且电子能量损失谱偏离 ZLP 很小, 回归到了传统的 PINEM 理论.

尽管 PINEM 效应的理论研究已经看似趋于完备, 有一些基本问题却尚未解答. PINEM 效应只是自由电子和光场相互作用的其中一种效应, 它与其他效应, 如自由电子在光场中的加速等有无联系? 在 PINEM 效应和量子 FEL (quantum free electron laser, QFEL) 中, 不再将自由电子处理为平面波; 在 FEL 的经典电动力学模型中或者加速器中, 也不再将自由电子处理为点粒子. 上述效应统一用满足有限持续时间、有限能量展宽的相干 QEWS 处理, 可以揭示这几种不同相互作用机制的联系. 利用满足海森伯最小不确定度原理的 QEW, 即波包能量 (动量) 的不确定度 σ_{E_0} ($\sigma_{p_0} = \sigma_{E_0}/v_0$), 以及高斯束腰处持续时间 (空间尺度) 不确定度

σ_{t_0} (σ_{z_0}) 满足 $\sigma_{E_0}\sigma_{t_0} = \hbar/2$ ($\sigma_{p_0}\sigma_{z_0} = \hbar/2$) 的 QEW. Pan 等^[70] 于 2019 年揭示了自由电子与辐射相互作用的不同机制. 首先, 为了能区分群速度 v_0 的自由电子 PINEM 谱中的边带, 单光子能量需超出电子束的能量色散^[33,71], 即

$$\Delta E < \hbar\omega \text{ or } \Delta p < \frac{\hbar\omega}{v_0}, \quad (5)$$

该条件等价于 QFEL 中的“强反弹”条件^[72], 其中 $\hbar\omega/v_0$ 是吸收/发射光子后, 电子的反弹动量; $\Delta p = \Delta E/v_0$ 则表示能量-动量展宽. 其次, 考虑到波包在自由空间中漂移过程中, 波包的空间尺寸随漂移时间 t_D 展宽, 即

$$\sigma_z(t_D) = \sqrt{\sigma_{z_0}^2 + \left[\left(\frac{\lambda_c^*}{4\pi} \right) \left(\frac{ct_D}{\sigma_{z_0}} \right) \right]^2}, \quad (6)$$

其中利用康普顿波长 $\lambda_c = h/(mc)$ 定义了 $\lambda_c^* = \lambda_c/\gamma^3$, 即量子电子束的自由传播导致轴向的空间拉伸以及能量的啁啾效应. 这种展宽引出了 Q-PINEM 机制的条件, 即 QEW 足够长, 可以视作平面波, 与近场的光波没有相位关系, 称为“长波包”条件^[72],

$$2\sigma_t(t_D) > T \text{ or } 2\sigma_z(t_D) > \frac{\beta\lambda}{2\pi}, \quad (7)$$

其中 $T = 2\pi/\omega$, $\beta = v_0/c$, 且 λ 是光波长. 这样, 利用“强反弹”条件 (5) 式以及“长波包”条件 (7) 式, 即可对自由电子-光子相互作用进行分类. 在相空间中的分类结果如图4(a)所示, 其中出现了之前未报道过的反常 PINEM 效应 (APINEM), 它与传统 PINEM 效应的区别体现在相空间分布中, 如图4(b), (c), (e)所示. 结果表明, 相互作用后,

电子是加速还是产生 PINEM 或 APINEM 只取决于 QEWE 的初始状态. 图 4(b)—(e) 给出了 4 种不同初始条件下, 相互作用前后的相空间表示.

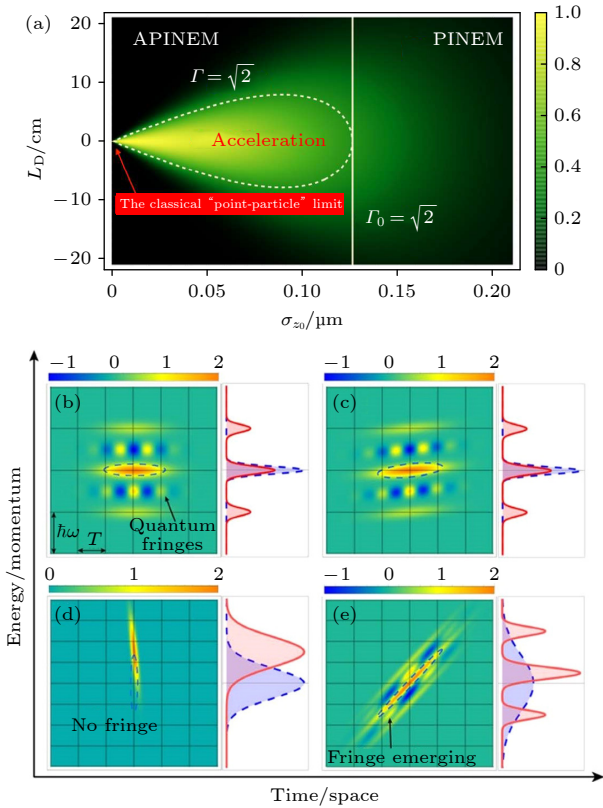


图 4 (a) 根据量子电子波函数初始参数 (σ_{z_0} , L_D) 对光与电子相互作用的分类. (b)—(e) PINEM、加速和 APINEM 在相互作用前 (折线椭圆) 后 (红色和黄色表示正值, 蓝色表示负值) 的相空间表示及其能量 (动量) 分布. QEWE 的初始分布 $W^{(00)}$ 的面积是 $h/2$, 单元格面积为普朗克常量 h . PINEM 情况下, 初始分布在时间方向扩展, 而其能量展宽较窄, 其中 (b) 为无啁啾, (c) 为预啁啾; (d) 类粒子加速, 初始时间短且相位明确的 QEWE 具有净动量转移; (e) APINEM 情况. 初始量子电子束进行了强啁啾, 产生了量子干涉条纹^[70]

Fig. 4. (a) Universal classification of light-matter interaction regimes in terms of the initial parameters of the quantum electron wave function: its minimal axial waist size σ_{z_0} and the pre-interaction drift length from this point, L_D . (b)–(e) Illustrations of PINEM, acceleration, and APINEM processes in phase-space representation before (broken-line ellipses) and after (positive, red and yellow; negative, blue) interaction and their energy (momentum) distributions. The initial distributions $W^{(00)}$ of the QEWE of area $h/2$ are overlaid over a grid of area h (Planck constant) tiles: PINEM case, the initial distribution is temporally (or longitudinally) expanded, and its energy spread is narrow: (b) unchirped; (c) prechirped; (d) particle-like acceleration with net momentum shift for an initially temporally short QEWE with well-defined phase; (e) APINEM case. Expanded and strongly prechirped initial QEWE, with quantum interference fringes emerging^[70].

3 PINEM 的实验进展及应用

PINEM 实验技术的进步与理论的进展是相辅相成的, 各种潜在应用也被不断发掘. 从 PINEM 诞生起, 人们就已经设想将其应用在超快动力学成像等方面^[54–56,73–75]. Ropers 等实现了皮秒量级的近场, 揭示了 PINEM 效应中电子的量子行走的本质, 为 PINEM 在量子信息中的应用奠定了基础^[36,39,40,43]. 另外, 通过模拟实验条件发现, 在相互作用后, 光驱动的电子动量相干叠加态演化成一系列阿秒电子脉冲, 这又引起了人们对于其在阿秒相干控制、电子波包整形和电子梳中的应用的研究兴趣^[10,67,76–92]. 2016 年, Zewail 等^[57] 实现了红外波段 (1038 nm) 的 PINEM 成像, 在这之前的 PINEM 实验中, 用于激发样品的激光脉冲均为 500–800 nm, Zewail 等发现红外脉冲只需要使用很低的光通量便可实现 PINEM 边带显著的振幅; 红外泵浦还使得 PINEM 的能量分辨率提高到了 0.63 eV. 2017 年, Kamimer 研究组^[92] 利用红外泵浦进一步实现了 meV 的能量分辨率, 如果牺牲一部分时间分辨率, 能量分辨率甚至可以达到 1 meV 以下, 这种方法不同于传统 IELS 方法, 它并不受限于电子束初始的能量展宽. 此外, 基于相位匹配^[69]、回音壁模式^[53]、集成光子芯片^[52] 等实现的相互作用的增强不仅带来了诸如电子能量梳等物理现象, 而且提高了 PINEM 成像的分辨率. 因此 PINEM 可以使用红外泵浦且具有高分辨成像的能力, 被应用于 PhP 动力学成像^[55]、光子晶体腔模式寿命以及品质因子^[54] 等研究中. Q-PINEM 理论被发展以应用于光量子态的产生和表征、光子-电子纠缠等方面^[35,37,38,44–47,49,93].

3.1 阿秒脉冲、电子波包整形与电子的相干控制

探究原子尺度物质动力学过程是物理学正蓬勃发展的领域. 研究超快动力学的途径往往是通过将样品的性质“刻印”在辐射、透射光场或者是透射电子束上, 通过接收光子或者电子信号来获取物质中的动力学信息, 因此超快电子和 X 射线成像的光谱学是这一领域发展成熟的基础, 但这些技术在很大程度上依赖于激光束以产生和表征更短的脉冲. 除了激光, 近期研究显示通过超快电子与近场的相互作用有望实现产生、控制和表征阿秒脉冲.

2015年 Ropers 等^[67]通过数值模拟发现,当自由电子和纳米针尖上的近场相互作用后,由于其波函数会受到一个正弦的相位调制,在随后自由空间中的传播过程中,不同光子阶的边带会获得不同的相位,这导致电子波函数的色散重构,并在一定的传播距离下,在时间上聚焦成一串阿秒脉冲,如图 5(a) 所示. 在实验条件下,通过模拟计算得出,时域聚焦的阿秒脉冲长度约 80 as,两个脉冲之间的时间间隔约为 2.25 fs,这种电子脉冲在时域上的聚焦出现在和样品相互作用后 1.88 mm 距离处. 由于该脉冲是等间隔分布的电子动量态的相干叠

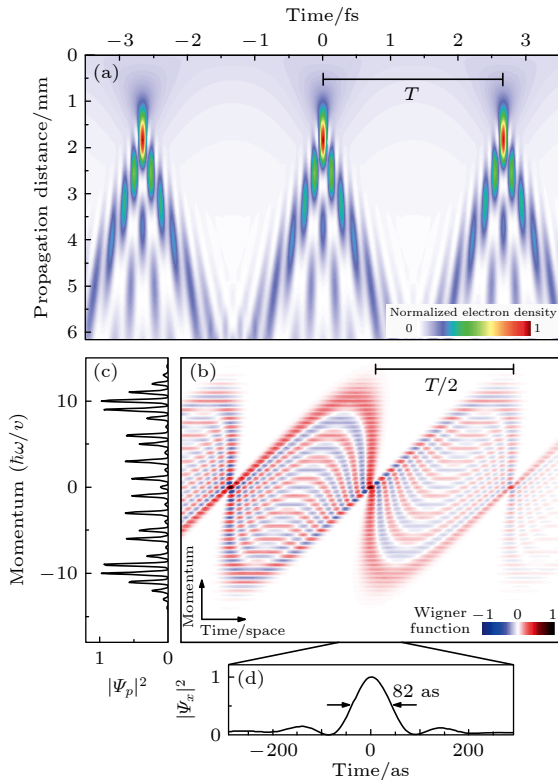


图 5 (a) 周期调制的电子脉冲结构的演化成阿秒脉冲,其中电子密度作为近场相互作用后传播距离的函数(数值模拟采用 $|g| = 5.7$); (b) 电子量子态在时间焦点位置处(图(a)中传播距离为 1.8 mm 处)光调制一个周期的相空间表示; (c) Wigner 函数的动量投影; (d) Wigner 函数空间投影的中心部分,脉冲持续时间(FWHM)仅为 82 as^[67]

Fig. 5. (a) A periodically modulated electron pulse structure evolved into attosecond pulse (electron density) as a function of the propagation distance after the near-field interaction (numerical simulation for $|g| = 5.7$); (b) phase space (Wigner) representation of one period of the light-modulated electron quantum state at the temporal focus position (propagation distance of 1.8 mm in panel (a)); (c) momentum projection of Wigner function exhibiting spectral modulations as observed in the experiments; (d) central part of spatial projection. A peak with a duration of only 82 as (FWHM) is produced^[67].

加,在通过时间焦点后,电子脉冲将在时域扩散开,但仍有复苏的可能,如图 5(b) 所示. 在光学中,这种电子阿秒脉冲等效于光束的相位被正弦光栅调制后在空间形成的菲涅耳近场衍射条纹. 为研究这种阿秒脉冲的起源,利用相空间表示是必要的. 由于传播距离 $x = vt$, v 是电子的速度, x 与 v 可以等价起来. 从相空间中,可以看到由于自由传播,相位受到的正弦调制剪切了相空间中 Wigner 函数的分布,在时间上形成了一个高度局域的投影. 另一方面,进一步的研究表明,这种阿秒电子脉冲的产生对初始时刻电子脉冲具体时域结构和动量结构的改变不敏感.

尽管数值模拟中得到的电子束焦距达到了毫米量级,但由于重复频率过高,阿秒电子脉冲仍然无法代替阿秒光脉冲完成时间分辨的实验. 实验中能否产生阿秒量级的时域聚焦,能否产生可用于对样品相干激发进行相位分辨的时间电子梳仍然未知.

除产生阿秒脉冲之外,如何对电子波函数进行相干控制也是一个非常重要的问题. PINEM 中,阶梯状能级之间的量子干涉、电子波函数相位受到的正弦调制、以及自由空间中的相干演化为控制电子波函数提供了必要条件. 拉姆齐分离振荡场方法是由拉姆齐提出的利用分子束磁共振测量核磁矩的方法,精度比拉比装置更好^[94],这种分离场方法为电子束的相位控制提供了新的思路. 2016年, Ropers 等^[76]将一束自由电子脉冲分别和两个分离的近场进行相互作用,实现了拉姆齐型自由电子干涉仪,如图 6 所示. 通过控制泵浦光的偏振,可以实现图 6(a) 所示的对电子能谱的进一步拉伸或者压缩,其中①是入射时的能谱. 在第一次相互作用期间,一个正弦相位调制被刻印到电子波函数上,导致②所示 EELS 边带的产生. ③和④则分别记录了双重相互作用后的相消性能谱和相长性能谱. 相互作用的相对相位决定最终态的相位调制. 未来实验可能利用这种类型的“电子-光干涉仪”,通过在间隙中插入光激发材料,以亚周期分辨率精确测量电子退相干. 进一步的应用包括近场相位分辨成像,基于自由电子的量子计算等.

2017年, Ropers 等利用定制的实验平台,实现了自由电子量子态的制备、相干控制和表征^[78]. 特别是,作者将量子态层析法 (quantum state tomography, QST) 用于重构自由电子的量子态,成功

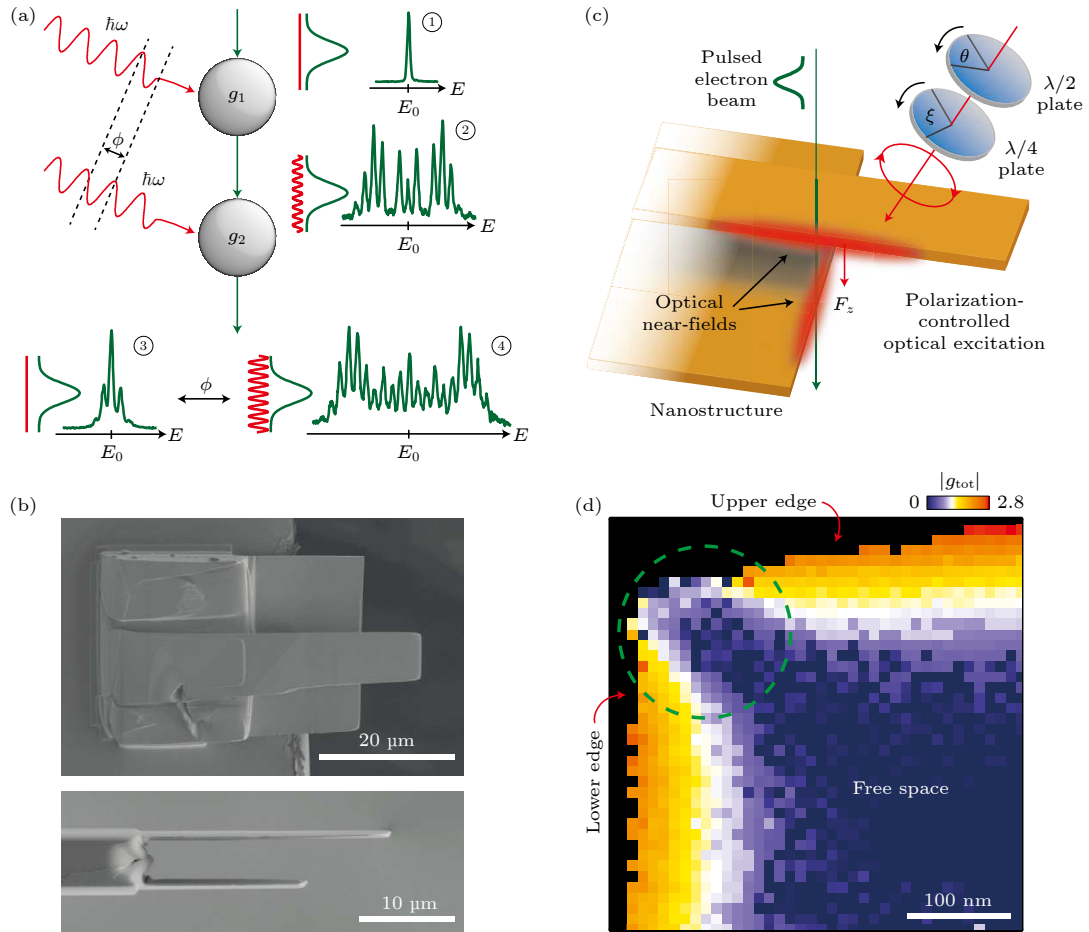


图 6 (a) 拉姆齐型自由电子干涉仪的工作原理: 同一个电子脉冲 (绿色) 依次作用于空间分离的两个场 g_1 和 g_2 ; (b) 具有两个相互作用区域的纳米结构的扫描电子显微镜 (俯视图和侧视图), 金片间距 $5 \mu\text{m}$; (c) 控制激发纳米结构的实验场景示意图; (d) 局域耦合强度 $|g_{\text{tot}}|$ 的空间分布图像, 此时激励条件几乎满足角落区域对电子能谱进行完全再压缩^[76]

Fig. 6. (a) Working principle of the Ramsey-type free electron interferometer: an electron pulse (green) is acted on at two spatially separated nodes g_1 and g_2 ; (b) scanning electron micrographs of the nanostructure featuring two interaction zones (top and side view), distance between gold paddles is $5 \mu\text{m}$; (c) sketch of the experimental scenario displaying polarization-controlled excitation of the nanostructure; (d) raster-scanned image of the local coupling strength $|g_{\text{tot}}|$ for excitation conditions near complete recompression in the corner region^[76].

将适用于纯态情况的理论推广到混合态情况, 不仅分别用重构的密度矩阵与 Wigner 函数表征了自由电子能谱的干涉效应, 而且首次实验观察到了 655 as 的电子脉冲的产生. 具体而言, 实验中采用了两种不同的实验装置. 首先利用一束激光及其二次谐波激发石墨片, 随后自由电子和近场相互作用并穿过石墨片. 自由电子和单色场相互作用后, 会受到正弦调制, 即

$$\begin{aligned} \psi(z) &= \exp\left\{-2i|g_\omega| \sin\left[\frac{\omega z}{v} + \arg(g_\omega)\right]\right\} \cdot \psi_{\text{in}}(z) \\ &=: A(g_\omega, \omega) \cdot \psi_{\text{in}}(z), \end{aligned} \quad (8)$$

式中, $\psi_{\text{in}}(z)$ 表示相互作用前的电子量子波函数, 为了简化删去了对横向坐标的依赖, z 是电子运动轨迹的空间坐标, g_ω 表示与频率为 ω 的单色光场的

耦合系数, v 是电子速度. 利用 Wigner 函数可以更清晰地看到这种正弦型的相位调制, 图 7 所示为 $g_{\text{pump}} = 3.95$ 及 $g_{\text{probe}} = 3.52$ 的条件下进行模拟得到能谱. 如果考虑和双色场 (频率分别为 ω 与 2ω) 相互作用, 对电子波函数的相位调制就不再是正弦调制:

$$\psi_{\text{out}}(z) = A(g_\omega, \omega) \cdot A(g_{2\omega}, 2\omega) \cdot \psi_{\text{in}}(z), \quad (9)$$

此时, 通过调整两束泵浦光之间的相对相位 $\theta = \arg(g_\omega) - \arg(g_{2\omega})/2$ 可以相干地控制自由电子和光场的相互作用, 实现形态丰富的 PINEM 谱.

其次, 利用定制的实验平台, 使两束具有可控相对相位的光分别激发空间分离的两片石墨片, 然后自由电子分别与两个近场相互作用, 如图 8(a)

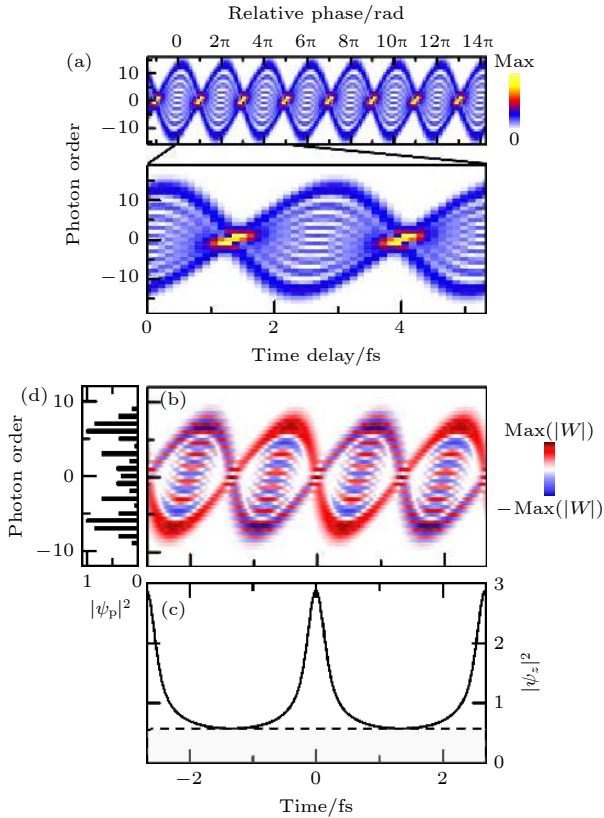


图 7 时域阿秒脉冲整形的模拟 (a) 模拟所得能谱图, 每个光周期中有 80 as 的时间聚焦, 约占光周期 3%; (b) 相应的 Wigner 函数; (c) Wigner 函数的时间投影显示出对密度函数的调制, 脉冲持续时间 (FWHM) 为 531 as (减去阴影部分顶部的基线后, 脉冲持续时间有效值为 296 as); (d) 对应的电子能谱 (动量投影) [78]

Fig. 7. Simulation of attosecond temporal reshaping a simulated spectrogram assuming: (a) Energy spectrum obtained by simulation, including a small timing jitter of 80 as (3% of the optical period); (b) corresponding Wigner function; (c) temporal projection of the Wigner function exhibits density modulations with a FWHM pulse duration of 531 as (after baseline subtraction, rms pulse duration: 296 as); (d) corresponding electron energy spectrum (momentum projection) [78].

所示. 该实验中, 调整了两片石墨片间的距离, 分别是 5 μm 和 1.5 mm, 这段距离中自由电子波函数将自由演化. 此过程可以视为量子态的制备, 与第二个近场相互作用的过程则视为量子态的探测. 通过调整泵浦和探测之间的延时, 可得到以光周期循环的电子谱, 如图 8(b) 所示. 通过“用于自由电子的量子态正则重构的光谱量子干涉 (spectral quantum interference for the regularized reconstruction of free-electron states, SQUIRRELS)”在 $g_{\text{probe}} = 3.52$ 条件下重构量子态的 Wigner 函数, 可见由于电子在分离场之间自由传播, 导致最终

Wigner 函数出现明显的剪切特征. 将 Wigner 函数进行时域投影可得到半高全宽 655 as 的脉冲序列, 比文献 [67] 模拟的要宽一个数量级左右, 并且重复周期依然只有 2.5 fs 左右.

2018 年, Garcia 等 [10] 利用反射镜打断了光在自由空间中的传播, 构造了一个半无限光场, 这时对光场场强的空间傅里叶变换得到的波矢与自由电子吸收/发射单光子造成的动量改变 Δk 匹配起来, 实现了在真空中自由电子和光场 (而不是光介质诱导的近场) 直接耦合. 同时, 如果反射镜能够支持表面等离激元传播, 这种相互作用会变得更强烈. 在该工作中, 厚约 30 nm 的氮化硅薄膜上沉积了 43 nm 的银薄膜作为反射镜, 反射镜被安装在一个支架上, 支架能够围绕两个不同的轴进行旋转, 光的入射角度及偏振角可调. 自由电子与两个光脉冲在同一位置相互作用, 通过调节两个光脉冲间的相对延时 $\Delta_2 - \Delta_1$ 可以对电子波函数进行相干控制. 实验中, 以 500 as 为步长调整两个光脉冲延时, 可以相干地控制电子的能量-动量分布, 电子的边带布居以 2.6 fs 的周期振荡, 该周期正是光学周期 $2\pi/\omega$, 和解析的表达式给出的结果一致. 除了对电子与半无限光场的相互作用的阿秒相干调控, 该工作还展示了对自由电子与表面等离极化激元 (surface plasmon polariton, SPP) 的相互作用的阿秒-纳米相干控制, 如图 9 所示. 由于 SPP 行波和半无限光场之间的干涉, 产生了一个驻波分布, 被自由电子采样从而形成了实空间中的“快照”. 利用纳米等离激元法布里-珀罗 (Fabry-Perot, FP) 谐振腔, 同时采用阻止自由电子和半无限光场相互作用的几何构型, 可以单独成像 FP 腔中的等离激元谐振模式. 通过以 334 as 为步长改变两个光脉冲的相对延时, 可以间接地控制光激发等离激元的相对相位, 从而形成依赖于时间的干涉相长-相消的序列. 这种成像方式不会受到 EELS 能量分辨率的限制. 文献 [10] 中指出, 利用离子研磨、聚焦离子束刻蚀加工等技术, 可以设计出对自由电子透明, 但是部分反射 X 光的结构, 通过调整脉冲延时, 有可能实现泽秒 (zeptosecond, zs, 10^{-21} s) 相干控制. 该工作通过模拟两个有相对延时的 X 光脉冲 (单光子能量为 777 eV, 脉宽为 100 fs) 被镜面样品以 35% 的反射率反射, 展示了实现泽秒相干控制的可能性. 模拟中, 采用的延时调整步长为 30 as, 模拟

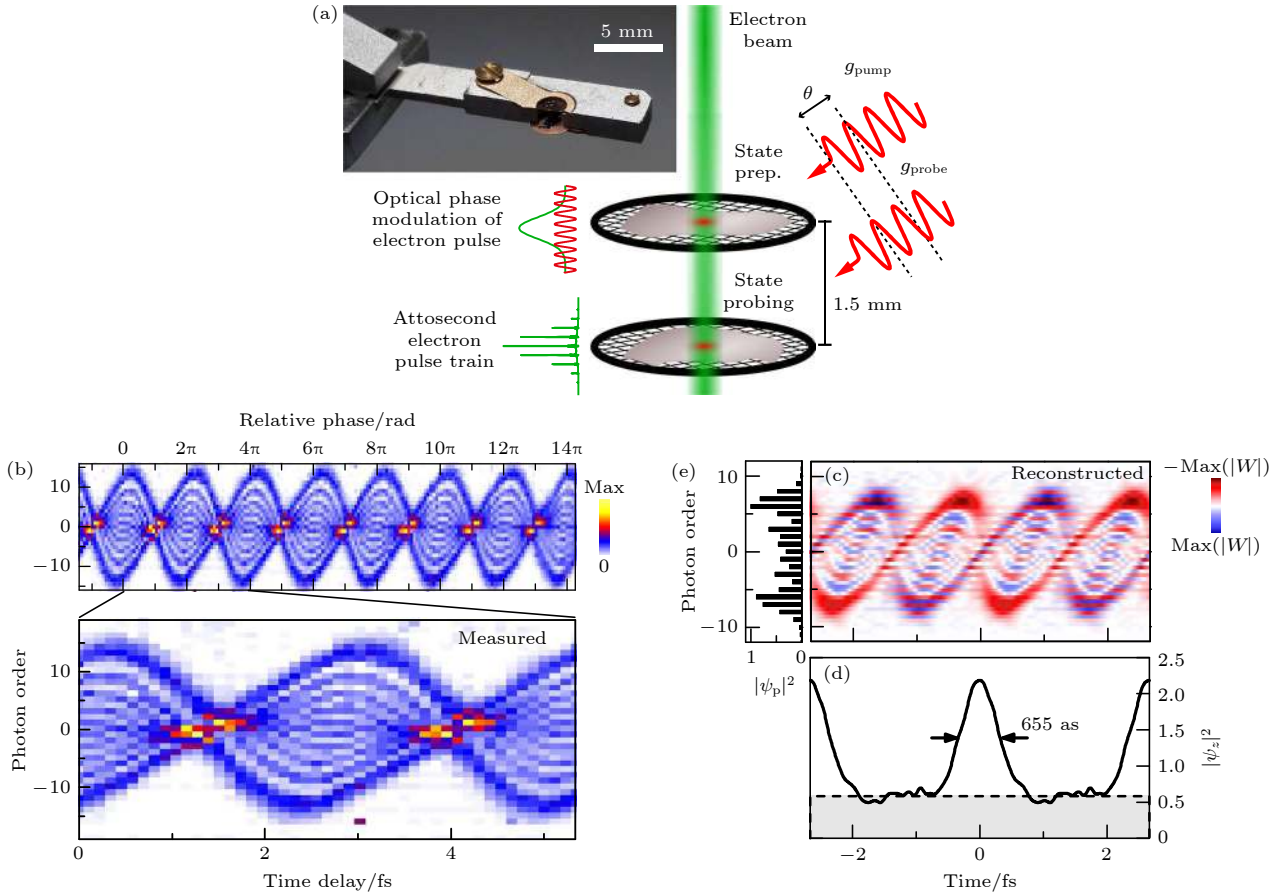


图 8 阿秒电子脉冲序列的实验演示 (a) 使用两个石墨薄片来制备阿秒电子脉冲序列的实验装置示意图, 插图定制为 TEM 样品架; (b) 多个光周期的实验光谱图 (上) 以及其中两个周期的特写 (下); (c) 重构的 Wigner 函数; (d) Wigner 函数的时间投影展示了对密度的调制, FWHM 为 655 as (减去阴影区域上部基线后, 脉冲有效持续时间 277 as); (e) 对应的电子能谱 (动量投影)^[78]

Fig. 8. Experimental demonstration of attosecond electron pulse trains: (a) Sketch of the experimental set-up employing two graphite flakes for the preparation (upper plane) and characterization (lower plane) of attosecond electron pulse trains, and the inset is photograph showing the custom-built TEM sample holder; (b) experimental spectrogram recorded over multiple optical cycles (top) and close-up of two cycles (bottom); (c) reconstructed Wigner function; (d) temporal projection of the Wigner function exhibits density modulations with a FWHM of 655 as (after subtraction of a baseline indicated by the grey-shaded area; r.m.s. pulse duration of 277 as); (e) corresponding electron energy spectrum (momentum projection)^[78].

预测一阶光子阶边带比 ZLP 低 10^{-5} 数量级左右, 同时, 电子能谱边带相位被以 X 光的光周期调制, 强度则每 511 zs 下降 1%。因此, 该框架可以将相干控制推广到泽秒机制中, 在未来有望成为泽秒科学研究的平台之一。

以上都是对电子波函数进行纵向相位调制, 利用轨道角动量 (orbital angular momentum, OAM) 的传递可以改变电子波函数的横向相位。考虑到当圆偏光与纳米腔相互作用时, 能够激发出具有非零拓扑电荷和螺旋相位分布的表面 SPP。2019 年, Garcia 等^[83] 利用与文献 [10] 相同的实验框架, 实现了从近场手性等离激元向自由电子传递 OAM, 如图 10 所示。沿 z 轴传播的 200 keV 的超短电子脉冲冲击银/氮化硅薄膜, 其中银层上刻有直径为 0.8 μm 纳

米孔。其中光脉冲在 $y-z$ 平面传播, 与电子束方向形成 δ 角, 通过控制光脉冲的延时, 可以控制手性等离激元近场, 从而实现对涡束性质的阿秒精度调控。这套实验框架也适用于其他带电粒子的物质波如质子束等, 有望为解决强子物理中的基本问题的提供新思路。

2020 年, Reinhardt 和 Kaminer 等^[85] 提出了一套利用光对自由电子波包进行整形和优化的理论。通过设计光脉冲并利用梯度下降算法进行优化, 可以实现电子能量梳、电子能量移动、阿秒电子脉冲等电子波包的整形; 此外, 这种波包整形技术理论上可以将电子叠加态转移到相干材料的激发中, 有望在阿秒科学中得到更多的应用。

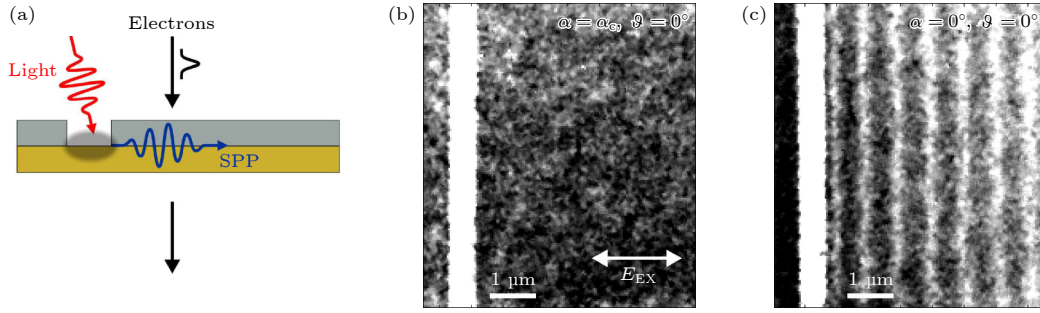


图 9 自由电子与光激发的 SPP 相互作用的示意图 (a) 在银层中雕刻的一维纳米腔通过光照明产生 SPP 的示意图; (b) 旋转样品方向, 使得实验测量中电子-光相互作用为零时的能量滤波图像; (c) 实验测量中具有不可忽略的电子-光相互作用的能量过滤图像. 只有在后一种构型中, 传播光和 SPP 场才会在电子束的作用下产生位置相关的干涉, 从而产生一个空间振荡的场振幅, 可以在真实空间中成像^[10]

Fig. 9. Visualization of propagating surface-plasmon polaritons: (a) Schematic representation of the generation of surface plasmon polaritons by optical illumination at the edge of a nanocavity carved in the Ag layer; (b) experimentally measured energy-filtered image for a sample orientation such to have a vanishing electron-light interaction; (c) experimentally measured energy-filtered image for a sample orientation such to have a non-negligible electron-light interaction. Only in the latter configuration a position-dependent interference of the propagating light and SPP fields as mediated by the electron beam occurs giving rise to a spatially oscillating field amplitude that can be imaged in real-space^[10].

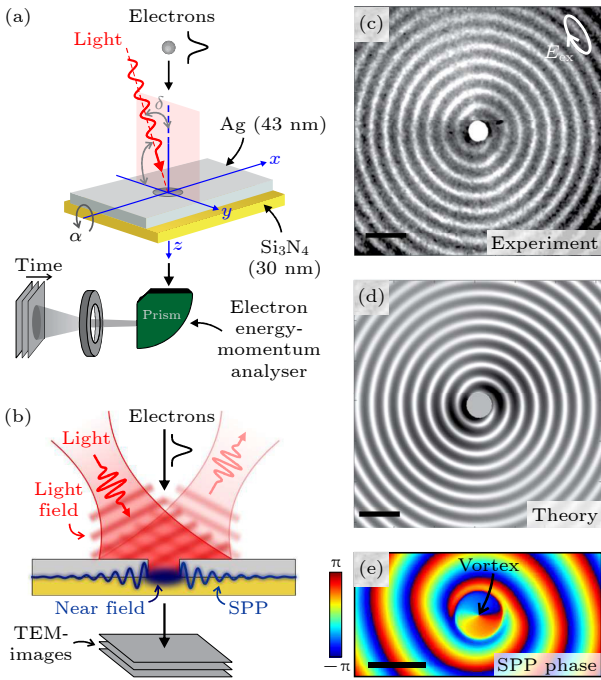


图 10 (a) 实验过程示意图; (b) 非局域全息法的示意图; (c) 电子-SPP 相互作用后非弹性散射电子的空间分布, 比例尺为 $2\ \mu\text{m}$; (d) 利用文中详细介绍的半解析理论计算的实空间电子强度分布, 比例尺为 $2\ \mu\text{m}$; (e) FDTD 模拟得到的界面总电场 z 分量的相位图 (比例尺为 $1\ \mu\text{m}$)^[83]

Fig. 10. (a) Schematic representation of the experimental geometry; (b) schematic representation of the non-local holographic method; (c) experimentally measured spatial distribution of the inelastically scattered electrons following the electron-plasmon interaction, scale bar, $2\ \mu\text{m}$; (d) calculated real-space electron intensity distribution using the semi-analytical theory detailed in the text (scale bar, $2\ \mu\text{m}$); (e) simulated phase map of the z component of the total electric field at the interface obtained from FDTD simulations (scale bar, $1\ \mu\text{m}$)^[83].

3.2 PINEM 成像

最初 PINEM 是作为一种近场成像方法提出的, 2009 年 Zewail 等^[33]通过飞秒激光激发碳纳米管的近场, 根据能量滤波后的 EELS 成像碳纳米管近场. 随着 PINEM 理论和实验技术的不断发展, 人们先后实现了对银纳米线^[95]、纳米颗粒^[96,97]、纳米针尖^[67]、多层石墨烯^[98]、光子晶体^[54]等的近场成像. 此外, 还实现了由反射镜诱导的半无限光场 (而不是近场 PQs)^[10]、SPP^[83,84]、PhP^[55]等的成像. PINEM 成像的应用范围从实空间中近场模式分布的表征^[54]扩展到记录时间分辨动力学演化^[55]、重构倒空间色散关系^[54]与测量模式寿命^[53,54]等. 根据现有的报告, PINEM 已经可以实现 $1\ \text{nm}$ 的空间分辨率^[52]、微电子伏特的能量分辨率^[52]以及百飞秒的时间分辨率^[53–55].

由于低品质因子和本征光损耗的影响, 早期人们并没有意识到纳米腔的存在是否会影响到自由电子-PQs 的相互作用. 2021 年, Kaminer 等^[55]利用 UTEM 实现了当时最强的电子-腔光子相干相互作用, 这种强度的相互作用使得仅利用 pJ 量级的光脉冲能量实现 PINEM 成像成为可能, PINEM 在对脆弱样品成像时将更具有优势. 由于实验装置可以调整泵浦-探测延时、泵浦光的波长和偏振、样品的倾斜角以及电子相互作用后的能量滤波共 5 个自由度 (如图 11(a) 所示), 所以可对光子腔进行更完备的描述. 通过以 $5\ \text{nm}$ 步长改变泵浦波长, 以及改变泵浦光的偏振, 可以重构出样品的能带分布.

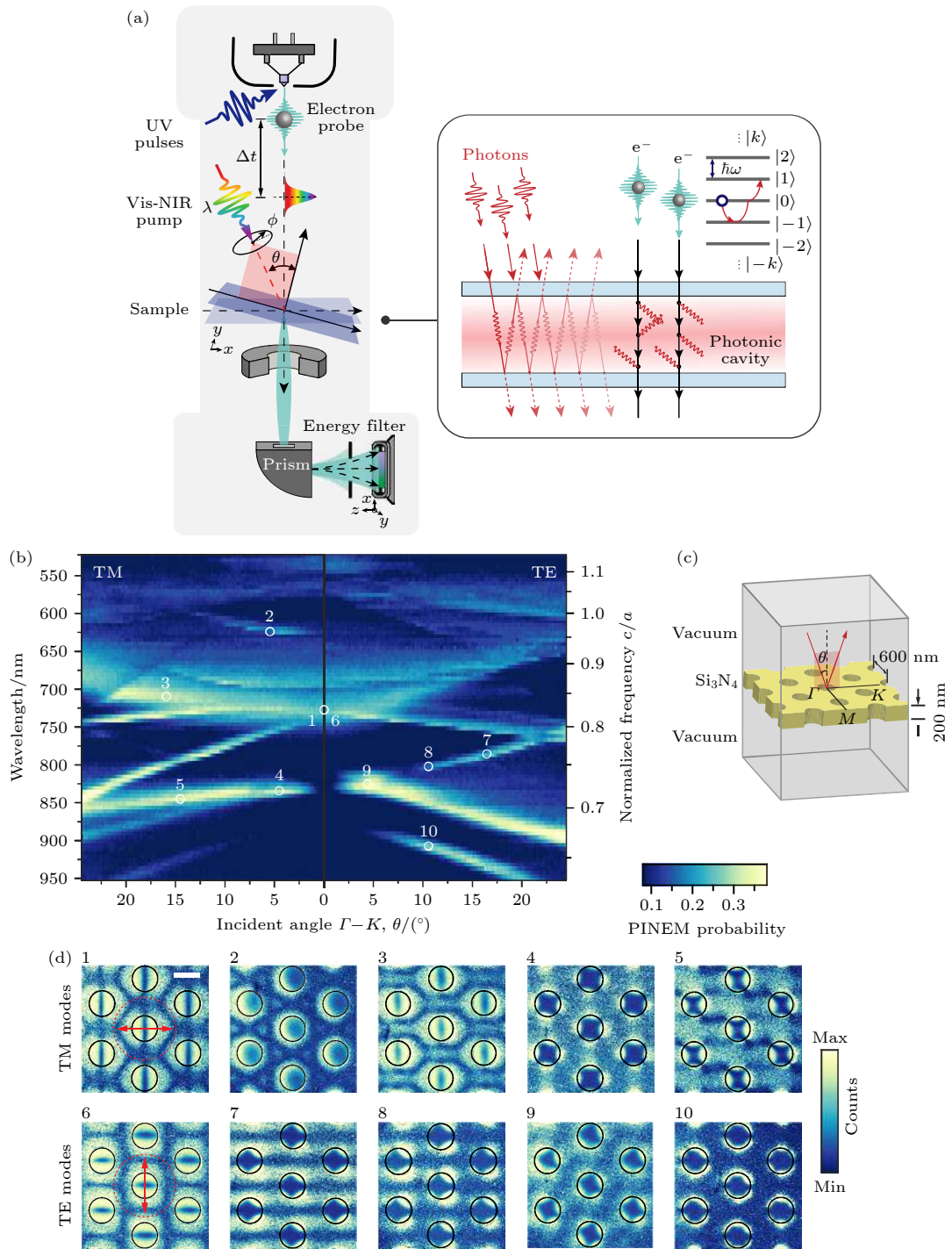


图 11 (a) UTEM 中自由电子与光子腔的量子相互作用的五个自由度. (b)–(d) 光子晶体能带结构的重建与 Bloch 模的直接成像 (b) 通过扫描入射光角度和波长而测得的能带结构; (c) 光子晶体和入射泵浦激光脉冲的示意图; (d) 在 (b) 中标记的角度和波长处测得的光子晶体的 Bloch 模式. 比例尺: 300 nm [54]

Fig. 11. (a) The UTEM setup offers five degrees of freedom to measure the interactions. (b)–(d) Reconstruction of band structure and direct imaging of the Bloch modes of the photonic crystal: (b) Band structure measured by scanning over incident laser angles and wavelengths; (c) layout of the photonic crystal and incident pump laser pulse; (d) Bloch modes of the photonic crystal measured at the angles and wavelengths marked in panel (b). Scale bar, 300 nm [54].

其中的色散关系是通过电子相互作用后的 EELS 谱中 2 倍于 ZLP 半高宽外的相互作用概率积分得到的, 表示为概率随波长、泵浦光入射角变化. 同

时, 能带图上任意一点所代表的 Bloch 模式也能通过 PINEM 相互作用概率表示出来, 如图 11(b) 所示. 利用电子探针脉冲对样品上的空气孔进行扫

描, 会得到耦合系数 $|g|$ 随着空间位置发生 RO 现象, 这体现了 PINEM 相互作用的量子本质. 另一方面, 光子晶体腔较高的品质因子也使得成像腔内时间动力学成为可能, 通过调整泵浦探测延时可以直接得到腔模式寿命. 实验表明, 低 Q 值 (腔模寿命更短) 与高 Q 值 (腔模寿命更长) 的光场模式和自由电子耦合时, 具有不同的动力学效应. 具体而言, 高 Q 值的光场模式和自由电子相互作用后得到的电子损失能量谱中边带的增强更明显, 意味着相互作用更强; 同时, 高 Q 值的腔对电子色散 (electron-chirp, EC) 产生的时间-能量倾斜效应的抑制作用更明显. 该工作中的光子晶体腔是刻蚀了

空气孔的氮化硅样品, 实验发现相比于穿过空气孔的电子, 直接穿过氮化硅薄膜的电子会减少 87.5%. 当样品对自由电子几乎透明时, PINEM 甚至可以以几乎无伤的方式探测到样品内部的电场分布. 此外, PINEM 可以使用中红外激光泵浦, 从而探测更小能量尺度的动力学, 而时间分辨的光子隧道扫描显微镜与时间分辨的光发射电子显微镜 (PEEM) 则还未应用于中红外波段. 随着 EELS 的发展, EELS 的能量分辨率越来越高, 目前已经实现从极薄的样品中提取出 PhP 的色散关系, 还可以测量介质体内和表面的纯振动模式 (声子模式), 只需利用电子衍射提取色散关系. 然而, 这些

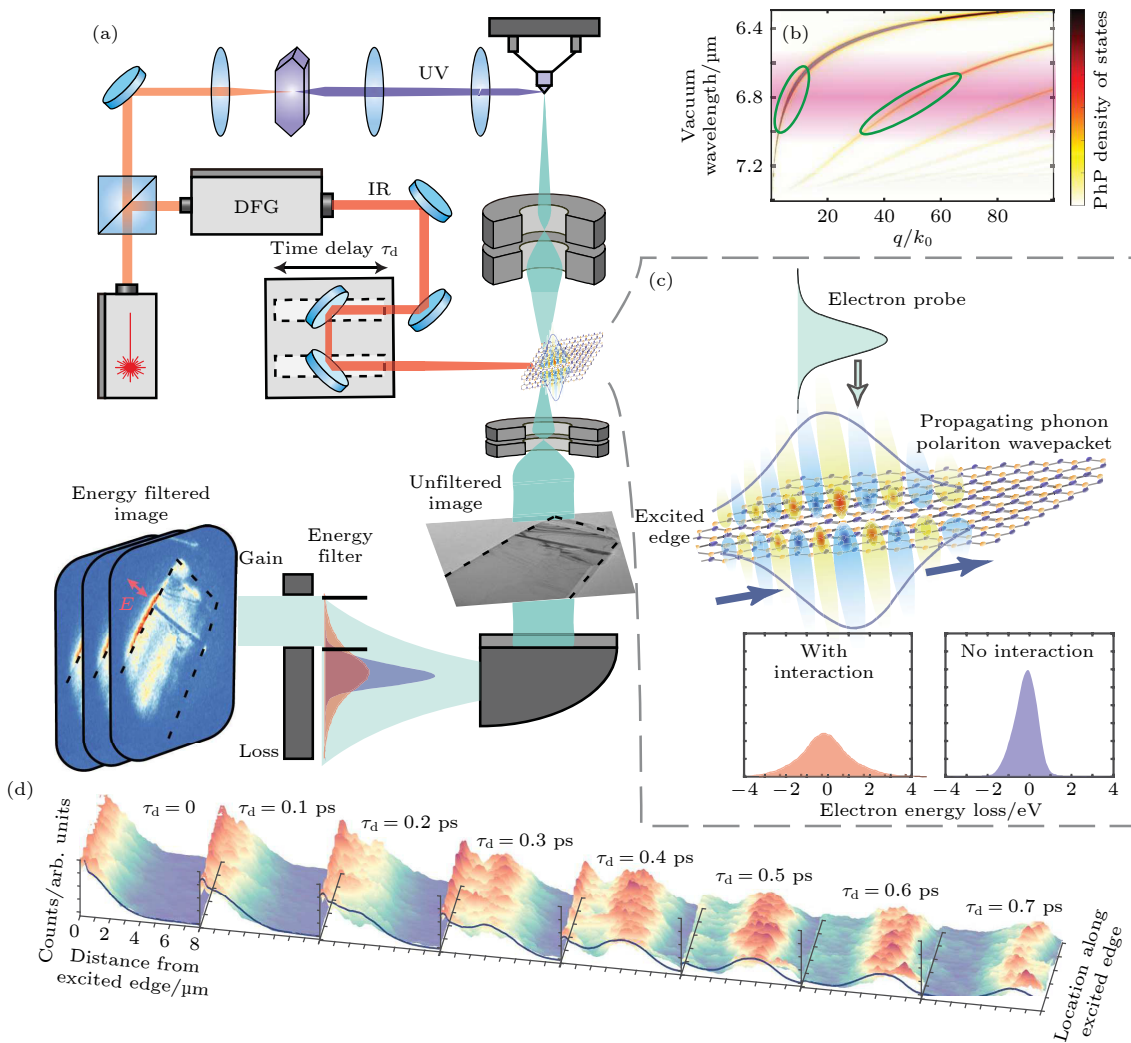


图 12 由 UTEM 观测二维极化激元波包^[55] (a) 实验装置以及实验过程示意图; (b) 样品的色散关系; (c) 自由电子探测 hBN 内部 (TM 偏振) 传播的 PhP 波包, 插图显示激光开启 (左) 和关闭 (右) 时的 EELS; (d) 测量不同时间延迟 τ_d 下的电子的能量滤波, 显示了 PhP 波包的传播动力学

Fig. 12. Direct observation of two dimensional (2D) polariton wave packets using UTEM^[55]: (a) Experimental setup and the process; (b) dispersion relation of the sample; (c) free electron probing the (TM polarized) propagating PhP wave packet inside the hBN, and the insets show EELS spectra with the laser on (left) and off (right); (d) measurement of the energy-filtered electrons for different time delays τ_d showing the propagation dynamics of the PhP wave packets.

EELS 实验只能得到极化激元的静态信息, 不能得出极化激元波包的演化动力学等. 考虑到 PhP 的群速度较慢, 而自由电子和 PQs 的相互作用时间很短, PINEM 是实现时间分辨动力学成像的优质候选者.

2021 年, Kaminer 等^[55] 利用 PINEM 的上述优势实现了对二维双曲色散材料 hBN 样品中 PhP 波包的时间分辨动力学成像 (图 12), 该工作为电子束成像和显微添加了新工具. 图 12(b) 所示为样品的色散关系, 该样品为氮化硅基底上生长的 55 nm 厚的纯 hBN 同位素薄片, 其每个频率对应多个色散分支, 每个分支又对应一个不同的波包. 红外脉冲 (粉色) 的光谱带宽激发了一系列极化激元模式 (图中用绿色线圈出). q/k_0 为 PhP-光子波数比; 由于使用中红外波段的激光泵浦, 最后得到的 PQs 的能量量子小于电子波包初始的能量宽度, 这使得电子的 PINEM 谱是连续的能量分布而不是离散的峰, 如图 12(c) 所示. 利用 PINEM 首次观察到了 PhP 群速度的加速和减速过程, 还观察到了波包在传播过程中的分裂等行为.

3.3 量子光学与量子信息

Q-PINEM 理论表明, 在量子极限下存在与传统 PINEM 效应迥异的新现象. 自由电子波函数与光子量子态相互作用可以产生诸如加速电子时域聚焦、电子的双脉冲现象以及与光 Talbot 效应相似的周期性崩塌与复苏^[37]、电子束中两个连续电子间的纠缠等效^[35]; 另一方面, 在经典极限下 (强光场 $\alpha \gg 1$ 且弱耦合 $g_{\text{Qu}} \ll 1$) Q-PINEM 理论会回归到原始的结论. 利用 Q-PINEM, 可以实现对自由电子波函数的进一步调制^[37]、自由电子和光子之间甚至是自由电子间的纠缠^[35,40]、自由电子量子比特^[36,43,45,47]、自由电子对量子态光的塑形等新奇的应用.

2019 年, Kfir^[35] 探究了依次穿过同一近场的两个电子的纠缠, 这种纠缠可以抑制两个电子之间的库仑相互作用. 两个自由电子间光子阶的符合测量概率图如图 13 所示. 当耦合系数满足 $g_{\text{Qu}} = 1$ 时, 仍允许电子对处于互斥状态 (图中圈处), 即当第一个电子失去一个量子, 第二个电子必有能量变化. 更强的耦合 ($g_{\text{Qu}} = 3$ 时) 将引起更丰富的纠缠现象, 插图为 $n = 12$ 时的符合概率. 在这样的电子对实验中, 能量增益对于第二个电子是独一无二的,

因此无需对两个电子的路径进行分别测量即可得知第二个电子的状态.

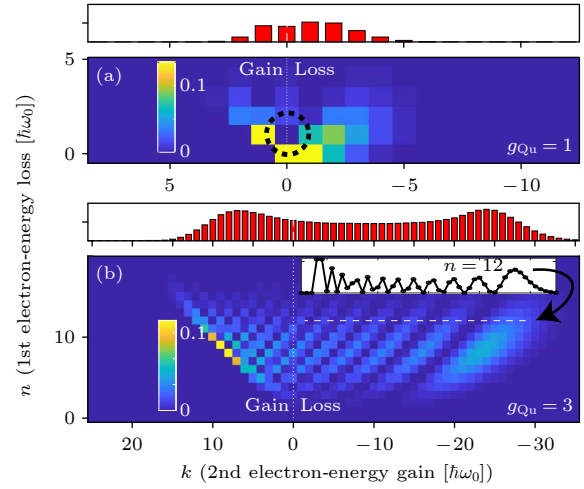


图 13 强耦合的纠缠特性, 由符合测量概率 $|c_{n,k}^{e-e}|^2$ 表示^[35] (a) 耦合系数 $g_{\text{Qu}} = 1$; (b) 耦合系数 $g_{\text{Qu}} = 3$

Fig. 13. Electron-electron interaction for two distant electrons in a beam, mediated by long-lived photons^[35]. The color map $|c_{n,k}^{e-e}|^2$ is the coincident probability: (a) $g_{\text{Qu}} = 1$; (b) $g_{\text{Qu}} = 3$.

此外, 2020 年, Di Giulio 和 García de Abajo^[37] 利用分束镜实现了两个自由电子的自相干, 展示了新奇的量子特性, 如图 14(a) 所示. 两个自由电子先后与近场相互作用, 其组成的系统的状态可以表示为概率密度分布的叠加:

$$\left(\frac{L}{2}\right) \sum_n |\psi_n(z, t) + e^{i\varphi} \psi_n(z', t)|^2 = \frac{\tilde{\rho}(z, \tau, \tau) + \tilde{\rho}(z, \tau', \tau')}{2} + \text{Re}\{e^{-i\varphi} \tilde{\rho}(z, \tau, \tau')\}, \quad (10)$$

其中 φ 是引入的相位, 与不同光量子态相互作用后, 电子系统的密度矩阵 $\tilde{\rho}(z, \tau, \tau')$ 的实部和虚部随着位移时间 τ 和 τ' 变化的图像如图 14(b) — (i) 所示, 其中假设两个电子之间的位移总是电子波长整数倍, 自由电子的动能为 100 keV, 近场光子的能量为 1.5 eV, 单光子耦合系数为 $|g_{\text{Qu}}| := |g_0| = 0.2$, 光场耦合系数 $|g| = 5$. 涉及压缩态时, 压缩参数 s 取为 2.

2019 年, Di Giulio 等^[34] 利用 Q-PINEM 从理论上证明了自由电子和近场的相互作用取决于样品的激发是玻色系统还是费米系统, 也取决于布居的统计性质. 其中对于玻色体系, 不同的光量子态 (光子数态、相干态以及热态) 对应的电子能谱分布差别明显. 文献^[34] 的作者提出可以通过光泵浦的

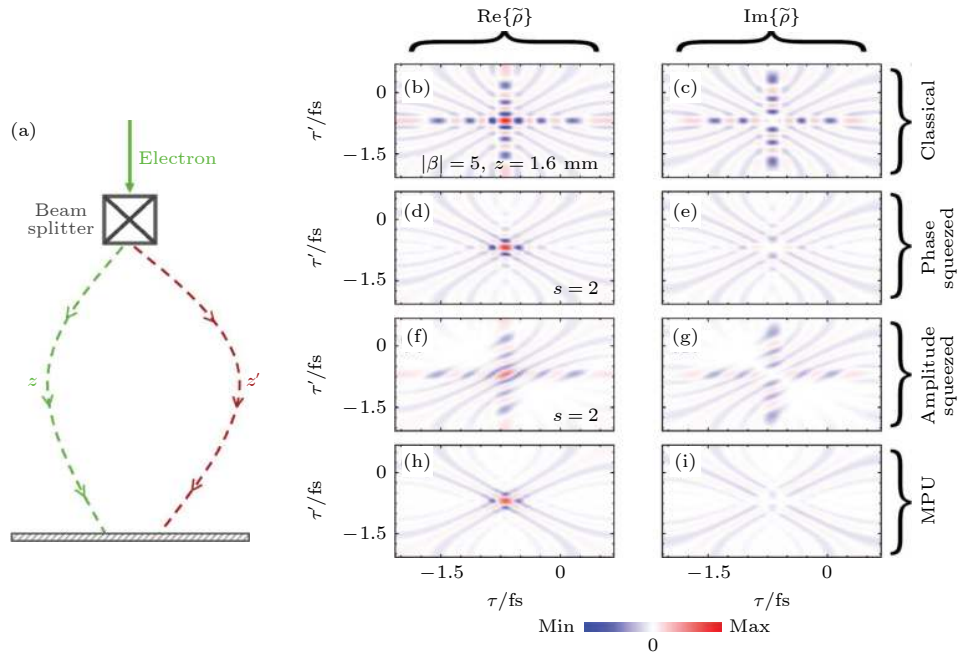


图 14 用自干涉法测量电子密度矩阵^[37] (a) 通过分束器后沿两条不同长度 (z 和 z') 的电子路径探索电子自相关的实验示意图; (b)—(i) 对不同的 PINEM 光场而言, 电子密度矩阵的实部 (左) 和虚部 (右) 作为两个电子各自的位移时间 τ, τ' 的函数
 Fig. 14. Measuring the electron density matrix through self-interference^[37]: (a) Sketch of an experimental arrangement to explore electron auto-correlation by means of a beam splitter and different lengths (z and z') along the two electron paths before recombination at the detection region; (b)–(i) real (left panels) and imaginary (right panels) parts of the electron density matrix as a function of shifted times τ and τ' for different statistics of the PINEM light.

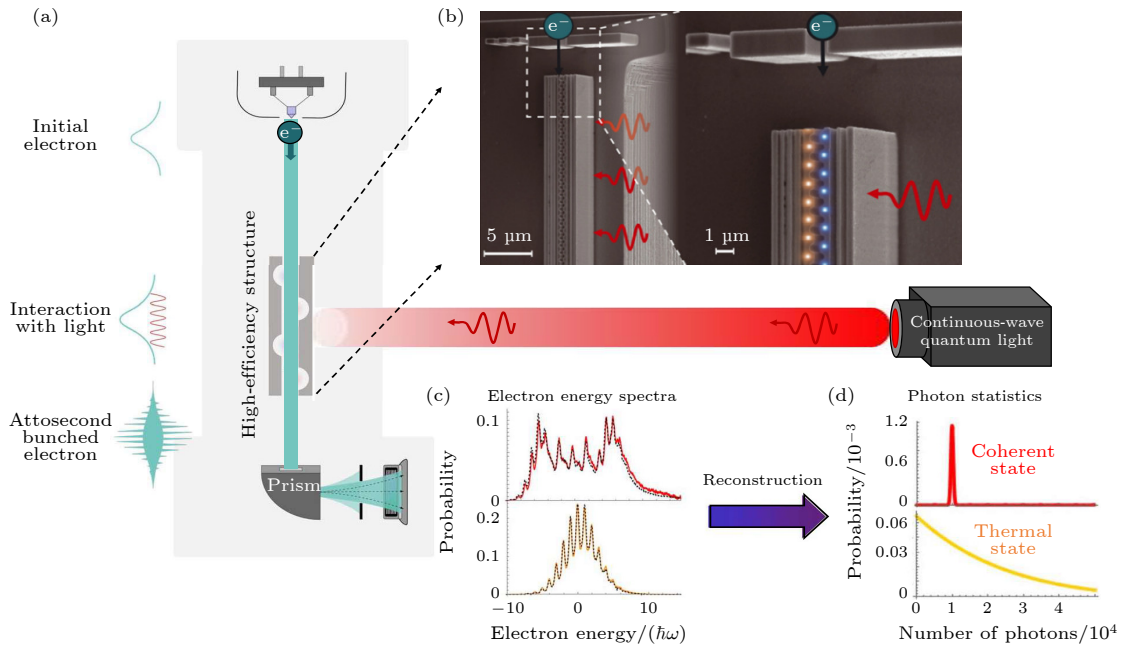


图 15 集成在电子显微镜中的硅光子器件提供了有效的电子与连续波光的相互作用, 使量子光子统计的检测成为可能^[40] (a) 透射电镜中电子波函数的连续波调制; (b) 硅-光子纳米结构 (扫描电子显微镜图像), 包括一个布拉格镜和一个周期通道; (c) 与相干光态和热光态相互作用后的电子能谱; (d) 由测量光谱重构的相应光子统计量
 Fig. 15. A silicon-photonics device integrated in an electron microscope provides efficient electron interactions with CW light, enabling the detection of the quantum photon statistics^[40]: (a) CW modulation of electron wave functions in transmission electron microscopy; (b) silicon-photonics nanostructure (scanning electron microscope image), consisting of a Bragg mirror and a periodic channel; (c) electron energy spectrum after the interaction with two types of light states: coherent and thermal; (d) corresponding photon statistics reconstructed from the measured spectra.

量子发射器 (quantum emitters, QEs) 来布居光学腔, 在与自由电子相互作用之后, 通过自由电子能谱峰强度可直接复现腔布居的统计量, 如自关联函数. 这种方法很可能被用于分辨复杂材料中的多体激发, 如强关联体系等. 同时, 也为超快等离子激元、纳米结构等的动力学提供了一种新的研究方式.

至此, Q-PINEM 相关的应用研究仍仅限于理论计算, 很大程度上是由于其他光量子态的脉冲强度达不到相干态光脉冲的强度, 从而导致自由电子和光场耦合较弱. 2021 年, Kammerer 等^[40] 利用准相位匹配和逆向设计等方法, 实现了一个能高效耦合电子和量子态光的硅光子平台, 可以通过改变光纤放大器的状态改变输出的光量子态, 证明了光的量子统计性质会改变它们与自由电子的相互作用, 如图 15 所示. 因此, 在量子极限下, 不能把光当作一种经典波来描述, 另一方面, 利用相互作用后电

子的能谱, 可以重构出光的量子统计性质, 这得益于在相互作用过程中自由电子和光子之间产生的纠缠, 与之前理论研究的结论一致.

该工作提出了“自由电子的量子行走”理论, 将 PINEM 相互作用过程视为自由电子行走的过程, 在每一个无穷小的步骤, 有三种可能: i) 电子保持在当前的能级; ii) 电子发射光子, 移动到较低的能级; iii) 电子吸收光子, 移动到更高的能级. 如果光场处于热态, 那么自由电子的每一次行走都是完全退相干的, 结果等效于经典随机行走; 当自由电子是与完全相干光相互作用时, 电子的每一次发射与吸收都能在能态间保持明确的相位, 是量子行走过程; 当自由电子和部分相干光相互作用时, 则有概率会发生坍塌, 能态间的相位被清除, 如图 16(a) 所示. 从量子行走到随机行走的转变是一个退相干的过程, 是通过将光子统计从相干态逐渐变到超泊

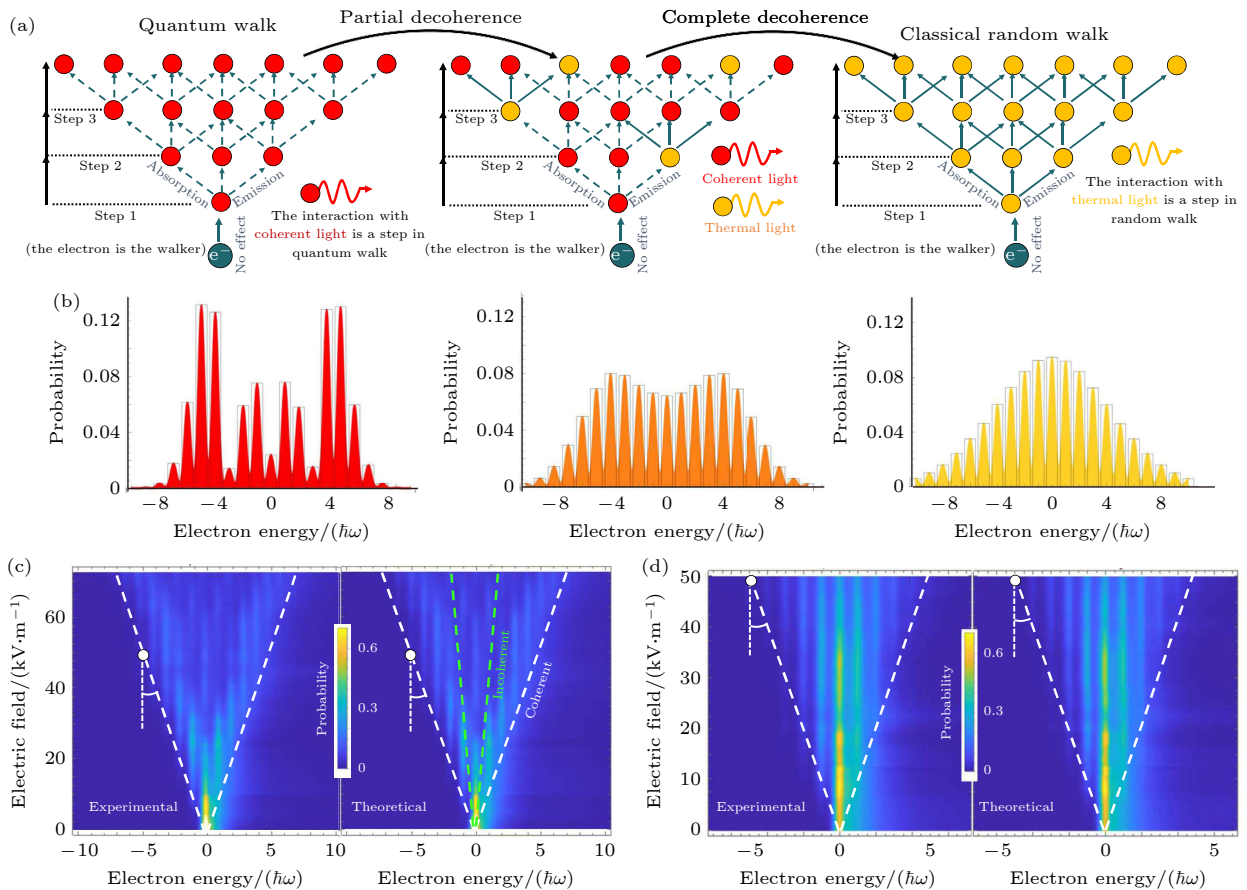


图 16 自由电子-光相互作用在电子能谱上刻印了光子的量子统计^[40] (a) 电子行走者与光子进行连续的相互作用; (b) 电子行走理论与 Q-PINEM 理论完全匹配; (c) 相干态和 (d) 热态的电子能谱随电场振幅的变化

Fig. 16. Free-electron-light interactions imprint the quantum photon statistics on the electron energy spectra, demonstrating the transition from quantum walk to classical random walk of a free electron^[40]: (a) Electron walker performs consecutive interactions with the photons; (b) electron walker theory exactly matches with the Q-PINEM theory; (c) experimental and theoretical electron energy spectra for (c) coherent and (d) thermal states evolving with the electric field amplitude.

松态,再变到热态的连续过程来实现的,而非无序诱导^[99-103].相互作用后,电子的能谱如图16(b)所示,与热态和完全相干态相互作用的结果刚好分别对应于随机行走、量子行走的特征.与相干光和热光相互作用后电子的能谱随着光场功率改变的理论、实验结果如图16(c)和图16(d)所示.实验发现,对于固定的光场功率而言,相干光和热光造成的电子能谱展宽接近,即图16(c)和图16(d)中的斜率因子相等,因此电子与热光和与相干光的相互作用同样有效.通过调整相干态的相干长度 l_c ,只会导致斜率增大,能谱宽度变窄.故造成与热光和相干光的作用后电子能谱差异的原因应该是更高阶的相干性(即光子统计性质)而不是相干长度或者相干时间.

根据 Q-PINEM 理论,相互作用后电子吸收/发射 k 个光子的概率为

$$P_k = \sum_n |c_{-k}^{n+k}|^2 \rho_{\text{ph}}(n+k, n+k), \quad (11)$$

其中 c_{-k}^{n+k} 是系数,而 $\rho_{\text{ph}}(n, m)$ 是光子态在 Fock 表象下的密度矩阵.利用(11)式,就能通过电子能谱重构光子的统计关联度 $g^{(n)}$.在这个过程当中,自由电子被作为量子弱测量的探针,而光则是待测系统. EELS 是强投影测量方式,可以通过一组投影算符进行建模,即

$$\mathbf{M}_k = |E_0 - k\hbar\omega\rangle \langle E_0 - k\hbar\omega|, \quad (12)$$

光的初始密度矩阵 ρ_{ph} 与经过投影测量后的密度矩阵 ρ_{ph}^k 之间的差异取决于和自由电子纠缠的程度,可由保真度表示:

$$F_k = \left[\text{tr} \left\{ \sqrt{\rho_{\text{ph}} \rho_{\text{ph}}^k} \sqrt{\rho_{\text{ph}}} \right\} \right]^2, \quad (13)$$

当保真度接近 1 时,测量几乎不改变光的状态,自由电子和相干光相互作用属于这种情况,因此该过程被称为量子弱测量;热光则相反,保真度大幅降低,这意味着电子探针的行为更像是能改变光状态的投影测量.因此自由电子的作用可根据待测系统的状态不同分为两个极端——量子弱测量和投影测量.电子波函数永远不会在时间和空间中坍缩,只在能量域中坍缩.如果电子波函数在时间空间和实空间坍缩,那么结果将表现为带电点粒子和光场相互作用的非相干叠加,不会出现 PINEM 谱中离散的峰;相比之下,能量空间的坍缩将导致电子波函数分裂为多个扩展了数个光周期的子波函数,

在系统的联合态中表现为和光子态的纠缠.

除了利用量子光场为电子波函数塑形,还可以通过自由电子获得目标光子态.2021 年 Kaminer 等^[38]发展了 Q-PINEM 理论的密度矩阵形式,同时提出了一种用于处理电子和腔模连续相互作用的鲁棒性方案,如图 17 所示.通过电子枪和一些外部光源(如激光脉冲)分别产生具有特定能量分布的电子输入态和光子输入态,随后腔模场和电子脉冲之间发生相互作用,输出纠缠态,再用 EELS 对电子进行测量.图 17(a)的插图列出了几种适合于强耦合的 Q-PINEM 相互作用的可选光子结构.为了表征产生的光子态,可以使用传统的量子光学检测方案,如符合计数^[104]和零差检测^[105,106].至于实验的可行性则取决于空腔寿命和连续电子相互作用时间之间的差异.Kaminer 等^[93]从理论上提出了利用 Q-PINEM 产生猫态以及在连续变量的量子计算和通信中起着关键作用的 GKP 态的方法,该方法能够在 10% 的后选择概率下生成超过 10 dB 压缩和 90% 以上保真度的光学 GKP 态.

2021 年 Baum 等^[45]提出了实验实现自由电子量子比特的设想,如图 18 所示.如果激光的入射角度和偏振选择合适,电子束穿过被激光照亮的薄膜时,以光周期变化的电场就会对电子的动量施加周期性的调制.从能量空间上看,电子吸收/放出光子会造成能量的改变,从时域上看,运动速度较快的电子会逐渐追上运动速度较慢的电子,电子束转变为一系列持续时间为飞秒甚至是阿秒的超短脉冲,在经过时域焦点之后,超短脉冲再次分散,时域结构瓦解.然而,当传播距离超过某个范围时,每个脉冲的加速部分将赶上其减速部分.因此,量子干涉可能可以恢复原始的波函数,形成时间对比度优化的阿秒电子脉冲或为后续的多束激光操作制备特殊的时间结构.在特殊的传输距离下,通过激光调制可以形成自由电子量子比特.图 18(b)显示了能谱和边带相位的演化,从顶部到底部分别为初始相位、半复苏相位以及完全恢复时的相位,使用高斯包络来描述电子有限的时间相干性,在动能为 75 keV 时,电子的波包如图 18(d) 所示, L 为传播距离, t 为时间.

2022 年, Kaminer 等^[47]从理论上探究了利用自由电子在两个空间分离的光子态之间引入纠缠的可能性.这之前,所有基于 PINEM 的纠缠,都只涉及在物质中创造纠缠,如自由电子自身的纠

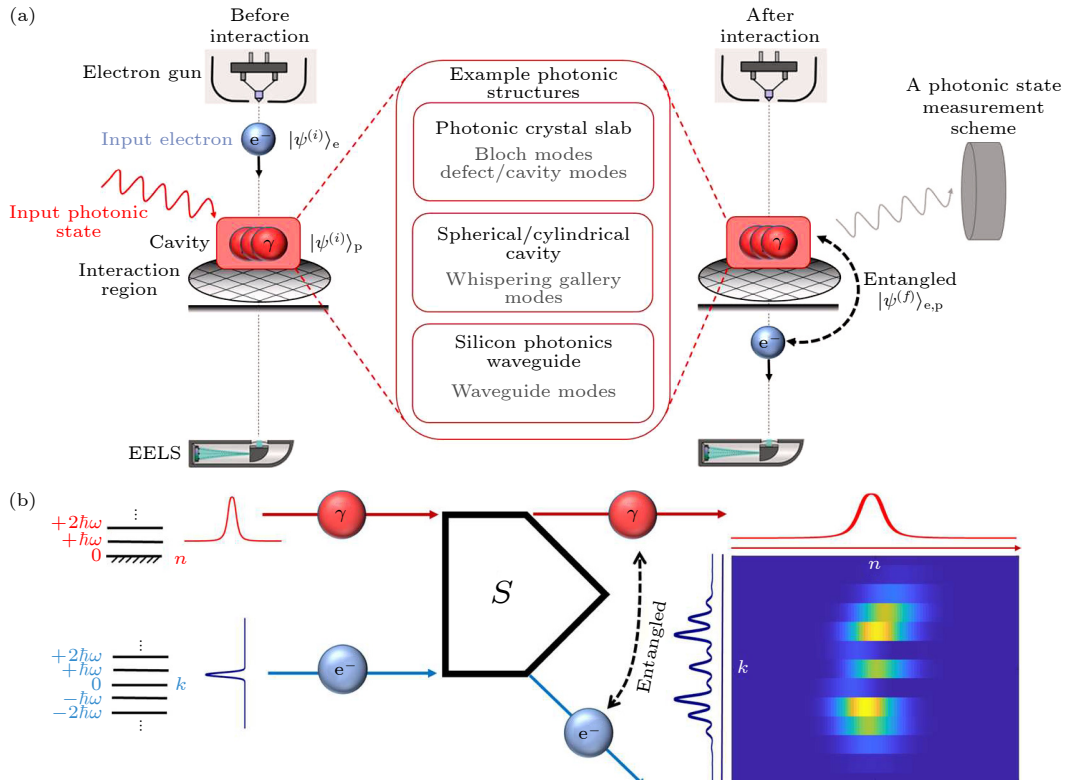


图 17 利用 Q-PINEM 塑造具有新奇量子统计的光子态^[38] (a) Q-PINEM 相互作用的物理实现示意图; (b) 单次 Q-PINEM 相互作用的方案

Fig. 17. Shaping photonic states of novel quantum statistics using Q-PINEM interactions^[38]: (a) Schematic for a physical realization of a Q-PINEM interaction; (b) interaction scheme of a single Q-PINEM interaction.

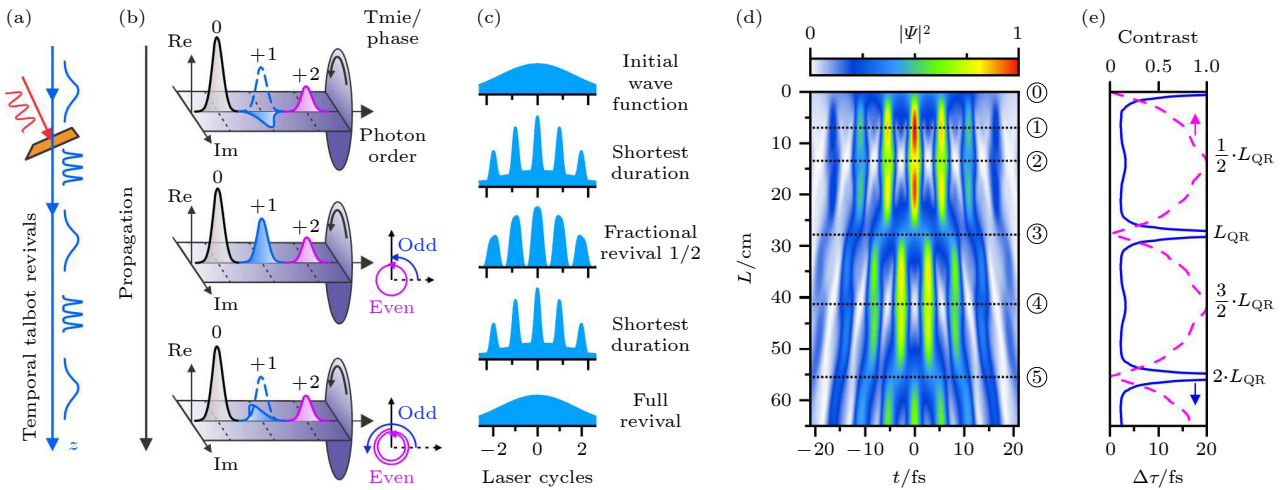


图 18 最大对比度下的量子复苏和亚光周期电子显微示意图^[45] (a) 阿秒电子脉冲的示意以及自由电子量子比特的概念; (b) 能谱和边带相位的演化; (c) 电子的时域波包脉冲; (d) 模拟的电子波包 $|\Psi|^2$; (e) 电子脉冲持续时间 τ (实线) 和时间对比度 (虚线) 作为 L 的函数

Fig. 18. Quantum revivals and sub-light-cycle electron microscopy at maximum contrast^[45]: (a) Concept for exploiting quantum revivals for generating attosecond electron pulses and qubits; (b) evolution of the energy spectrum and sideband phases; (c) wave packets and pulses in the time domain; (d) simulated quantum carpet $|\Psi|^2$ of an electron wave packet; (e) electron pulse duration $\Delta\tau$ (solid) and temporal contrast (dashed) as a function of L .

缠^[107,108]. 两个空间分离的光子态可以通过各种系统实现, 如光子晶体腔、硅光子波导等, 因此这种概念可以很容易地被拓展到其他 PQs 系统中, 如

PhP 等. 只需要测量电子便可获得是否成功创造纠缠、光的聚束与反聚束等信息, 如图 19 所示. 其中一个电子与两个 Fock 态光场进行相互作用,

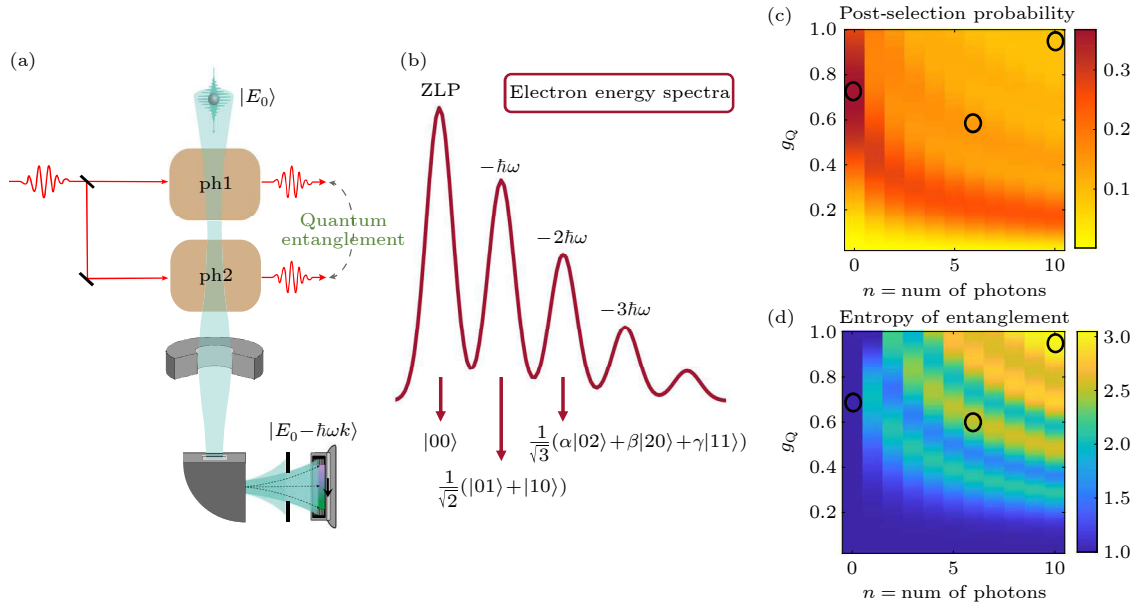


图 19 (a) 实验方案; (b) 相互作用后, 每个电子能态被纠缠到不同的光子态; (c) 对于不同的初始参数, 一次相互作用后对能量为 $E_0 - \hbar\omega$ (即 $k = 1$) 的电子进行后选择的概率图; (d) 对能量为 $E_0 - \hbar\omega$ 的电子 (即 $k = 1$) 进行后选择后两个光子态之间纠缠熵的图^[47]

Fig. 19. (a) A scheme of the proposed experiment; (b) each electron energy is entangled to a different photonic state after the interaction; (c) a map of the probability to post-select the electron with energy $E_0 - \hbar\omega$ (i.e., $k = 1$) after one interaction for different initial parameters; (d) a map of the entropy of entanglement between the two states of light after post-selecting on electrons with energy $E_0 - \hbar\omega$ (i.e., $k = 1$)^[47].

再进入带有能量滤波的 EELS. 自由电子可以通过与两个光子态之间的纠缠传递信息, 当然, 这其中最重要的是实现量子信息交换的必要条件, 即自由电子的能量相干不确定度必须小于单个光子的能量, 同时也需要两个光子态在空间上分离足够的距离, 使得电子可以通过自由空间传播过程改变其空间形状.

4 总结与展望

本文介绍了近年来, PINEM 从首次实验演示到迅速发展的过程, 综述了自由电子与 PQs 相互作用的理论与实验进展. PINEM 在经典光场、量子光场中的应用都有了令人振奋的成果. 然而, 目前 PINEM 的实验需要进一步深入, 例如从 Q-PINEM 来看, 实验上还未实现令人满意的单光子-单电子强耦合 ($g_{Qu} > 1$). 从自由电子波函数的塑形来看, 还可以进一步地探索波函数中其他自由度的调控, 以及各个自由度之间的组合, 甚至引入类似光场合成维度的概念. 当完全掌握对自由电子波函数的塑形能力之后, 可以将塑形后的自由电子波函数应用于成像、量子信息等领域. 这将依赖于相关

技术的进步, 如强度更高的连续激光、效率更高的单光子源、更先进的探测手段和样品制作技术等.

PINEM 在成像方面具有很大优势, 不仅可以无伤探测对电子透明的样品, 还可以反映出样品内部电场的强度分布情况. 对于无法通过其他近场成像方式实现的元激发动力学成像, 也可以通过中红外泵浦的 PINEM 实现. PINEM 的实空间分辨率、时间分辨率、能量分辨率等也在不断进步, 测量模式寿命、模式体积等也成为了可能. 未来有望联合自由电子的其他自由度, 对特殊的近场模式进行成像.

由于单电子-单光子之间耦合较弱, 在量子光学领域还有许多未知的问题等待的探索. 这些未知问题的发现来源于前瞻性实验和理论. Q-PINEM 在量子信息中的应用也还有待人们的发掘, 这包括制备新的光子态、自由电子与光子之间甚至自由电子之间的纠缠、电子和光之间的强关联^[48]、以及以自由电子作为信息载体进行传递^[89]等. 由于自由电子与光场相互作用本身具有量子行走的特性, Q-PINEM 也有望成为量子行走研究的重要平台.

除本文提到的应用, 基于自由电子的量子光学方面还有很多新奇的研究^[88,109–113], 如在 SEM 中

实现对 PINEM 的量子相干操纵^[114]、通过特定光场进行自由电子的超快调制^[86,90,91,115]、量子自由电子的非线性过程^[116,117]、PINEM 实现一维的鬼成像^[82]、自由电子与光子时间晶体相互作用^[109]等。相关的理论和模拟进展还包括利用第一性原理的直接计算^[118]、利用光子的平带共振或者连续体中的束缚态 (bound-state in the continuum, BIC) 等增强电子和光的耦合^[24,30]、将自由电子扩展到其他基本粒子物质波^[119,120] 等有趣的探索。此外, 人们关于 PQs 和自由电子的相互作用的研究远不止于 PINEM。基于自由电子的 CR、SPR 及 FEL、自由电子加速器等中的量子效应也引起了人们广泛的关注。有理由相信, 随着实验技术的进步以及新的实验方案的提出, 未来的自由电子与 QPs 的相互作用不仅能成为高能光源的基本理论、探究阿秒甚至泽秒科学的有力工具, 也将成为探索量子光学和量子信息的重要平台。

参考文献

- [1] Dirac P A M 1981 *The Principles of Quantum Mechanics* (London: Clarendon Press) pp204–207
- [2] Fox A M, Fox D P A M 2001 *Optical Properties of Solids* (New York: Oxford University Press) pp180–211
- [3] Vasa P 2020 *Adv. Phys. X* **5** 1749884
- [4] Scully M O, Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge University Press) pp145–217
- [5] Fox M, Fox D P A M 2006 *Quantum Optics: An Introduction* (New York: Oxford University Press) pp165–240
- [6] Walls D F, Milburn G J 2007 *Quantum Optics* (Heidelberg: Springer) pp197–211
- [7] Rivera N, Kamner I 2020 *Nat. Rev. Phys.* **2** 538
- [8] Ashcroft N W, Mermin N D 1976 *Solid State Physics* (New York: Holt, Rinehart and Winston) pp131–150
- [9] Freimund D L, Aflatooni K, Batelaan H 2001 *Nature* **413** 142
- [10] Vanacore G M, Madan I, Berruto G, Wang K, Pomarico E, Lamb R J, McGrouther D, Kamner I, Barwick B, Garcia de Abajo F J, Carbone F 2018 *Nat. Commun.* **9** 2694
- [11] Kamner I, Katan Y T, Buljan H, Shen Y, Ilic O, Lopez J J, Wong L J, Joannopoulos J D, Soljacic M 2016 *Nat. Commun.* **7** 11880
- [12] Kamner I, Mutzafi M, Levy A, Harari G, Herzig Sheinfux H, Skirlo S, Nemirovsky J, Joannopoulos J D, Segev M, Soljacic M 2016 *Phys. Rev. X* **6** 011006
- [13] Gover A, Pan Y 2018 *Phys. Lett. A* **382** 1550
- [14] Lin X, Easo S, Shen Y, Chen H, Zhang B, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kamner I 2018 *Nat. Phys.* **14** 816
- [15] Pan Y, Gover A 2018 *J. Phys. Commun.* **2** 115026
- [16] Roques-Carmes C, Rivera N, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kamner I 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041013
- [17] Pan Y, Gover A 2019 *Phys. Rev. A* **99** 052107
- [18] Lin X, Hu H, Easo S, Yang Y, Shen Y, Yin K, Blago M P, Kamner I, Zhang B, Chen H, Joannopoulos J, Soljacic M, Luo Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 5554
- [19] Adiv Y, Hu H, Tsesses S, Dahan R, Wang K, Kurman Y, Gorlach A, Chen H, Lin X, Bartal G, Kamner I 2022 arXiv: 2203.01698 [quant-ph]
- [20] Mizuno K, Ono S, Shimoe O 1975 *Nature* **253** 184
- [21] Tsesses S, Bartal G, Kamner I 2017 *Phys. Rev. A* **95** 013832
- [22] Massuda A, Roques-Carmes C, Yang Y, Kooi S E, Yang Y, Murdia C, Berggren K K, Kamner I, Soljacic M 2018 *ACS Photonics* **5** 3513
- [23] Rosolen G, Wong L J, Rivera N, Maes B, Soljacic M, Kamner I 2018 *Light Sci. Appl.* **7** 64
- [24] Yang Y, Massuda A, Roques-Carmes C, Kooi S E, Christensen T, Johnson S G, Joannopoulos J D, Miller O D, Kamner I, Soljacic M 2018 *Nat. Phys.* **14** 894
- [25] Remez R, Karnieli A, Trajtenberg-Mills S, Shapira N, Kamner I, Lereah Y, Arie A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 060401
- [26] Roques-Carmes C, Kooi S E, Yang Y, Massuda A, Keathley P D, Zaidi A, Yang Y, Joannopoulos J D, Berggren K K, Kamner I, Soljacic M 2019 *Nat. Commun.* **10** 3176
- [27] Jing L, Lin X, Wang Z, Kamner I, Hu H, Li E, Liu Y, Chen M, Zhang B, Chen H 2021 *Laser Photonics Rev.* **15** 2000426
- [28] Karlovets D V, Pupasov-Maksimov A M 2021 *Phys. Rev. A* **103** 012214
- [29] Wong L J, Kamner I 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 130502
- [30] Yang Y, Roques-Carmes C, Kooi S E, Tang H, Beroz J, Mazur E, Kamner I, Joannopoulos J D, Soljacic M 2021 arXiv: 2110.03550 [physics. optics]
- [31] Zhu J F, Du C H, Zhang Z W, Liu P K, Zhang L, Cross A W 2021 *Opt. Lett.* **46** 4682
- [32] Betzig E, Trautman J K 1992 *Science* **257** 189
- [33] Barwick B, Flannigan D J, Zewail A H 2009 *Nature* **462** 902
- [34] Di Giulio V, Kociak M, de Abajo F J G 2019 *Optica* **6** 001524
- [35] Kfir O 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 103602
- [36] Reinhardt O, Mechel C, Lynch M, Kamner I 2019 *Conf Lasers Electro-Opt San Jose, California, USA, May 5, 2019* pFF1F.6
- [37] Di Giulio V, Garcia de Abajo F J 2020 *Optica* **7** 1820
- [38] Ben Hayun A, Reinhardt O, Nemirovsky J, Karnieli A, Rivera N, Kamner I 2021 *Sci. Adv.* **7** eabe4270
- [39] Braiman G, Reinhardt O, Levi O, Mechel C, Kamner I 2021 *Conf Lasers Electro-Opt San Jose, California, USA, May 9, 2021* pFTh1N.6
- [40] Dahan R, Gorlach A, Haeusler U, Karnieli A, Eyal O, Yousefi P, Segev M, Arie A, Eisenstein G, Hommelhoff P, Kamner I 2021 *Science* **373** eabj7128
- [41] Gover A, Ran D, Zhang B, Pan Y M, Ianconescu R, Scheuer J, Friedman A, Yariv A 2021 *Front Opt. Laser Sci.* Washington DC, USA, November 1, 2021 pFTh6 D.1
- [42] Karnieli A, Rivera N, Arie A, Kamner I 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 060403
- [43] Reinhardt O, Mechel C, Lynch M, Kamner I 2021 *Ann. Phys.* **533** 2000254
- [44] Rivera N, Sloan J, Kamner I, Soljacic M 2021 arXiv: 2111.07010 [quant-ph]
- [45] Tsarev M V, Ryabov A, Baum P 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 043033
- [46] Zhang B, Ran D, Ianconescu R, Friedman A, Scheuer J, Yariv A, Gover A 2021 arXiv: 2111.13130
- [47] Baranes G, Ruimy R, Gorlach A, Kamner I 2022 *npj Quantum Inf.* **8** 32
- [48] Bloch J, Cavalleri A, Galitski V, Hafezi M, Rubio A 2022

- Nature* **606** 41
- [49] Feist A, Huang G, Arend G, et al. 2022 arXiv: 2202.12821 [quant-ph]
- [50] Feist J, Fernández-Domínguez A I, García-Vidal F J 2021 *Nanophotonics* **10** 477
- [51] Scheel S, Yoshi Buhmann S 2009 arXiv: 0902.3586 [quant-ph]
- [52] Henke J W, Raja A S, Feist A, et al. 2021 *Nature* **600** 653
- [53] Kfir O, Lourenco-Martins H, Storeck G, Sivis M, Harvey T R, Kippenberg T J, Feist A, Ropers C 2020 *Nature* **582** 46
- [54] Wang K, Dahan R, Shentcis M, Kauffmann Y, Ben Hayun A, Reinhardt O, Tsesses S, Kaminer I 2020 *Nature* **582** 50
- [55] Kurman Y, Dahan R, Sheinfux Hanan H, et al. 2021 *Science* **372** 1181
- [56] Barwick B, Park H S, Kwon O-H, Baskin J S, Zewail A H 2008 *Science* **322** 1227
- [57] Liu H, Baskin J S, Zewail A H 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **113** 2041
- [58] Sternbach A J, Chae S H, Latini S, et al. 2021 *Science* **371** 617
- [59] Yoxall E, Schnell M, Nikitin A Y, et al. 2015 *Nat. Photonics* **9** 674
- [60] Petek H, Ogawa S 1997 *Prog. Surf. Sci.* **56** 239
- [61] Davis T J, Janoschka D, Dreher P, Frank B, Heringdorf F J M z, Giessen H 2020 *Science* **368** eaba6415
- [62] Balistreri M L M, Gersen H, Kortkerik J P, Kuipers L, Hulst N F v 2001 *Science* **294** 1080
- [63] Yamamoto N 2016 *Microscopy* **65** 282
- [64] Garcia de Abajo F J, Asenjo-Garcia A, Kociak M 2010 *Nano Lett.* **10** 1859
- [65] Park S T, Lin M, Zewail A H 2010 *New J. Phys.* **12** 123028
- [66] Park S T, Zewail A H 2012 *J. Phys. Chem. A* **116** 11128
- [67] Feist A, Echterkamp K E, Schauss J, Yalunin S V, Schäfer S, Ropers C 2015 *Nature* **521** 200
- [68] Kociak M 2015 *Nature* **521** 166
- [69] Dahan R, Nehemia S, Shentcis M, Reinhardt O, Adiv Y, Shi X, Be'er O, Lynch M H, Kurman Y, Wang K, Kaminer I 2020 *Nat. Phys.* **16** 1123
- [70] Pan Y, Zhang B, Gover A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 183204
- [71] Kling P, Giese E, Endrich R, Preiss P, Sauerbrey R, Schleich W P 2015 *New J. Phys.* **17** 123019
- [72] Friedman A, Gover A, Kurizki G, Ruschin S, Yariv A 1988 *Rev. Mod. Phys.* **60** 471
- [73] Fu X, Barantani F, Gargiulo S, Madan I, Berruto G, LaGrange T, Jin L, Wu J, Vanacore G M, Carbone F, Zhu Y 2020 *Nat. Commun.* **11** 5770
- [74] Mkhitarian V, Dias E J C, Carbone F, García de Abajo F J 2021 *ACS Photonics* **8** 614
- [75] Ruimy R, Gorlach A, Mechel C, Rivera N, Kaminer I 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 233403
- [76] Echterkamp K E, Feist A, Schäfer S, Ropers C 2016 *Nat. Phys.* **12** 1000
- [77] Morimoto Y, Baum P 2017 *Nat. Phys.* **14** 252
- [78] Priebe K E, Rathje C, Yalunin S V, Hohage T, Feist A, Schäfer S, Ropers C 2017 *Nat. Photonics* **11** 793
- [79] Cai W, Reinhardt O, Kaminer I, de Abajo F J G 2018 *Phys. Rev. B* **98** 045424
- [80] Kozak M, Schonenberger N, Hommelhoff P 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 103203
- [81] Morimoto Y, Baum P 2018 *Phys. Rev. A* **97** 033815
- [82] Polman A, Kociak M, Garcia de Abajo F J 2019 *Nat. Mater.* **18** 1158
- [83] Vanacore G M, Berruto G, Madan I, et al. 2019 *Nat. Mater.* **18** 573
- [84] Harvey T R, Henke J W, Kfir O, Lourenco-Martins H, Feist A, Garcia de Abajo F J, Ropers C 2020 *Nano Lett.* **20** 4377
- [85] Reinhardt O, Kaminer I 2020 *ACS Photonics* **7** 2859
- [86] Garcia de Abajo F J, Konecna A 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 123901
- [87] Kozák M 2021 *ACS Photonics* **8** 431
- [88] Wong L J, Rivera N, Murdia C, Christensen T, Joannopoulos J D, Soljacic M, Kaminer I 2021 *Nat. Commun.* **12** 1700
- [89] Zhang B, Ran D, Ianconescu R, Friedman A, Scheuer J, Yariv A, Gover A 2021 arXiv: 2111.13130 [quant-ph]
- [90] Constantin Chirita Mihaila M, Weber P, Schneller M, Grandits L, Nimmrichter S, Juffmann T 2022 arXiv: 2203.07925 [physics. optics]
- [91] Madan I, Leccese V, Mazur A, Barantani F, La Grange T, Sapozhnik A, Gargiulo S, Rotunno E, Olaya J-C, Kaminer I, Grillo V, García de Abajo F J, Carbone F, Vanacore G M 2022 arXiv: 2206.02221 [quant-ph]
- [92] Pomarico E, Madan I, Berruto G, Vanacore G M, Wang K, Kaminer I, García de Abajo F J, Carbone F 2017 *ACS Photonics* **5** 759
- [93] Dahan R, Baranes G, Gorlach A, Ruimy R, Rivera N, Kaminer I 2022 arXiv: 2206.08828 [quant-ph]
- [94] Ramsey N F 1950 *Phys. Rev.* **78** 695
- [95] Piazza L, Lummen T T, Quinonez E, Murooka Y, Reed B W, Barwick B, Carbone F 2015 *Nat. Commun.* **6** 6407
- [96] Yurtsever A, Baskin J S, Zewail A H 2012 *Nano Lett.* **12** 5027
- [97] Yurtsever A, Veen R M v d, Zewail A H 2012 *Science* **335** 59
- [98] Park S T, Yurtsever A, Baskin J S, Zewail A H 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **110** 9277
- [99] Schreiber A, Cassemiro K N, Potoček V, Gábris A, Jex I, Silberhorn C 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 180403
- [100] Broome M A, Fedrizzi A, Lanyon B P, Kassar I, Aspuru-Guzik A, White A G 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 153602
- [101] Harris N C, Steinbrecher G R, Prabhu M, et al. 2017 *Nat. Photonics* **11** 447
- [102] Dadras S, Gresch A, Groiseau C, Wimberger S, Summy G S 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 070402
- [103] Karski M, Förster L, Choi J M, Steffen A, Alt W, Meschede D, Widera A 2009 *Science* **325** 174
- [104] Hong C K, Ou Z Y, Mandel L 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 2044
- [105] Leonhardt U, Knight P L, Miller A 1997 *Measuring the Quantum State of Light* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [106] Lvovsky A I, Raymer M G 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 299
- [107] Asban S, García de Abajo F J 2021 *npj Quantum Inf.* **7** 42
- [108] Mutzafi M, Kaminer I, Harari G, Segev M 2017 *Nat. Commun.* **8** 650
- [109] Dikopoltsev A, Sharabi Y, Lyubarov M, Lumer Y, Tsesses S, Lustig E, Kaminer I, Segev M 2022 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **119** 6 e21197051
- [110] Feist J, Fernández-Domínguez A I, García-Vidal F J 2020 *Nanophotonics* **10** 477
- [111] Konecna A, de Abajo F J G 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 030801
- [112] Schlawin F, Cavalleri A, Jaksch D 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 133602
- [113] Turner A E, Johnson C W, Kruit P, McMorrin B J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 110401
- [114] Shiloh R, Chlouba T, Hommelhoff P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 235301

- [115] Tsesses S, Dahan R, Wang K, Reinhardt O, Bartal G, Kaminer I 2022 arXiv: 2203.08518 [quant-ph]
- [116] Cox J D, Garcia de Abajo F J 2020 *Nano Lett.* **20** 4792
- [117] Konečná A, Di Giulio V, Mkhitarian V, Ropers C, García de Abajo F J 2020 *ACS Photonics* **7** 1290
- [118] Talebi N 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 080401
- [119] Luski A, Segev Y, David R, et al. 2021 *Science* **373** 1105
- [120] Akbari K, Di Giulio V, García de Abajo F J 2022 arXiv: 2203.07257 [physics. optics]

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Relativistic free electrons based quantum physics*Li Jing Liu Yun-Quan[†]

(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics and Collaborative Innovation Center of Quantum Matter,
School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 18 July 2022)

Abstract

The light-matter interaction is one of the fundamental research fields in physics. The electron is the first discovered elementary particle that makes up matter. Therefore, the interaction between electron and light field has long been the research interest of physicists. Electrons are divided into two kinds, i.e. bounded electrons and free electrons. The quantum transition of bounded electron system is constrained by the selection rules with the discrete energy levels, while the free electron systems are not. In the last decade, the experiments of photon-induced near-field electron microscopy (PINEM) have been demonstrated. The experimental setup of PINEM is based on ultrafast electron transmission microscopy (UTEM). The theoretical frameworks have also been developed to describe the interaction between quantum free electrons and optical fields. Within macroscopic quantum electrodynamics, the concept of photon is extended to photonic quasi-particles. Solutions of Maxwell's equations in medium that satisfy certain boundary conditions are called photonic quasiparticles, such as surface plasmon polaritons, phonon polaritons, or even magnetic field. The different dispersion relations of photonic quasi-particles produce abundant phenomena in the interaction between light and matter. The underlying information about the PINEM interaction can be inferred from the electron energy loss spectrum (EELS). It has been used for implementing the near-field imaging in its infancy. By now it is capable of not only realizing time-resolved dynamic imaging, reconstructing the dispersion relation of photonic crystal and its Bloch mode, but also measuring the mode lifetime directly. The PINEM has also been used to study free electron wavepacket reshaping, free electron comb, free electron attosecond pulse train, etc. Recently, this field has entered into the era of quantum optics, and people use PINEM to study novel phenomena in quantum optics, such as entanglement between free electrons and cavity photons, entanglement between free electrons and free electrons, free electron qubits, and preparation of novel light quantum states. In this paper, the theoretical and experimental development of free-electron quantum physics are reviewed. We have discussed the application scenarios of quantum free electron system. The current difficulties and future development are envisaged.

Keywords: photon-induced near field electron microscopy, free electron, quantum optics, time-resolved imaging

PACS: 42.50.Hz, 03.65.-w, 41.75.Fr, 42.50.-p

DOI: 10.7498/aps.71.20221289

* Project supported by the Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFA1604301) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92050201, 92250306).

[†] Corresponding author. E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn



基于相对论自由电子的量子物理

李靖 刘运全

Relativistic free electrons based quantum physics

Li Jing Liu Yun-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233302 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221289

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221289>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

新型超导量子比特及量子物理问题的研究

Novel superconducting qubits and quantum physics

物理学报. 2018, 67(22): 228501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180845>

一维超导传输线腔晶格中的拓扑相变和拓扑量子态的调制

Modulation of topological phase transitions and topological quantum states in one-dimensional superconducting transmission line cavities lattice

物理学报. 2022, 71(19): 194203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220675>

基于可调频光力晶格中声子-光子拓扑性质的模拟和探测

Simulation and detection of the topological properties of phonon-photon in frequency-tunable optomechanical lattice

物理学报. 2022, 71(22): 224202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221286>

连续变量纠缠态光场在光纤中传输特性的实验研究

Experimental investigation of transmission characteristics of continuous variable entangled state over optical fibers

物理学报. 2018, 67(2): 024203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171542>

音频段1.34 μm 压缩态光场的实验制备

Generation of audio-band frequency squeezed light at 1.34 μm

物理学报. 2018, 67(17): 174203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180301>

基于深紫外激光-光发射电子显微技术的高分辨率磁畴成像

High resolution imaging based on photo-emission electron microscopy excited by deep ultraviolet laser

物理学报. 2020, 69(9): 096801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200083>

专题: 阿秒物理

空气激光: 面向大气遥感的高分辨光谱技术*

张海粟¹⁾ 乔玲玲²⁾ 程亚^{1)2)†}

1) (华东师范大学, 精密光谱国家重点实验室, 上海 200241)

2) (中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(2022年10月5日收到; 2022年11月14日收到修改稿)

空气激光是以空气为增益介质产生的无谐振腔自由空间相干辐射, 具有高准直度、高相干性以及高强度等显著优势. 基于高功率超短激光脉冲非线性传输成丝过程, 可以远程诱导产生空气激光从而为大气遥感探测提供理想光源. 得益于空气激光产生时伴随的原子分子相干激发过程, 空气激光远程探测技术具有高光谱分辨率和高探测灵敏度, 为痕量分子探测、温室气体监测以及工业污染物检测等远程遥感应用提供了有力工具. 本文简单介绍空气激光的物理机制, 着重回顾空气激光远程探测的各种应用并对未来研究做出展望.

关键词: 大气遥感, 空气激光, 拉曼光谱, 强场物理**PACS:** 34.80.Gs, 42.50.Hz, 42.55.Lt, 42.65.Re**DOI:** 10.7498/aps.71.20221913

1 引言

随着近年来温室效应加剧, 极端恶劣天气频发, 世界各国对大气层高精度动态监控需求也越发急迫. 作为大气远程遥感的有力工具, 激光光谱学手段被广泛应用^[1]. 传统的激光遥感技术通常采用线性光学方案, 利用地基大能量激光系统向远程大气中发射高强度激光光束, 进而激发大气中污染物分子的特征能级辐射, 在地面观测站可以接收污染物分子引起的背向散射等非相干信号. 由于散射信号在全空间弥漫, 地基观测站所能收集的信号强度随传输距离增大表现为平方衰减规律, 从而严重限制了远程探测的信噪比和灵敏度. 近十多年来, 空气激光作为一个新颖的强场超快现象, 引起了国内外研究人员的广泛关注^[2-6]. 空气激光是指以空气中存在的原子分子或其衍生物为增益介质, 通过无谐振腔单程放大的方式产生的具有高准直度、高相干性及高强度的自由空间辐射. 与自发荧光辐射相比, 空气激光沿特定方向传输, 具有良好的空间指

向性和时空相干性, 并且其强度比荧光信号高若干数量级. 这些特征使其成为远程遥感技术的理想光源, 有望将远程遥感的灵敏度提高若干个数量级. 因此, 自空气激光现象发现以来, 人们便对其在远程探测中的应用进行了探索^[7-10].

Hemmer等^[7]于2011年率先提出将背向空气激光与双光子吸收或受激拉曼散射技术结合进行远程分子指纹谱测量. 随后Malevich等^[9,10]利用相向传输的台式化激光脉冲对这一方案进行了原理性验证, 间接证实了空气激光用于远程探测的可能性. 由于空气主要由氮气和氧气构成(氮气和氧气在空气中比例大于99%), 基于氮分子和氧分子及其电离解离产物包括氮分子离子、氮原子和氧原子产生空气激光是当前研究主流. 而氮分子离子(N_2^+)激光由于其独特的强场电离激发过程, 具有鲜明的量子相干性特征^[11]: 强场电离的分子离子是彻底的相干体系, 电子相干性、振动相干性、转动相干性为研究弱光下的强非线性过程和分子的量子相干调控物理提供了新途径, 并为远程大气遥感提供原理性的发现推动力.

* 国家重点研发计划(批准号: 2019YFA0705000)和国家自然科学基金(批准号: 12192251, 12134001)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

此外, 峰值功率超过几吉瓦 ($1 \text{ GW} = 10^9 \text{ W}$) 的飞秒激光在大气中非线性传输时可以克服自然衍射, 产生一个内核直径在 $100 \mu\text{m}$ 量级、峰值光强高达 $50\text{--}100 \text{ TW}/\text{cm}^2$ ($1 \text{ TW} = 10^{12} \text{ W}$) 的自引导通道, 即飞秒激光成丝^[12,13]. 目前, 普遍认为飞秒光丝是基于克尔自聚焦效应和等离子体散焦效应两者动态平衡而实现的突破衍射极限、不受聚焦系统数值孔径限制的超长距离光场约束. 飞秒激光成丝可以在远程大气中产生极小的聚焦光斑, 进而产生超高光强并激发大气中原子分子丰富的非线性效应. 结合空气激光和超快激光成丝, 为突破远程遥感中的探测灵敏度瓶颈提供了潜在的解决方案^[14,15].

2014年, Ni等^[16]首次在高功率飞秒激光成丝产生 N_2^+ 激光的过程中, 观测到了氮分子的转动拉曼信号并实现高达0.8%拉曼散射转换效率. 随后Liu等^[17]发现了 N_2^+ 激光的高阶级联拉曼散射, 并实现大于 2000 cm^{-1} 的拉曼频移, 对应数十个拉曼级次和数百个拉曼边带, 开启了空气激光在非线性光谱领域的重要应用. 最近, Zhao等^[18]利用飞秒激光成丝产生的超连续光谱和 N_2^+ 激光成功测量了二氧化碳(CO_2)和甲烷(CH_4)气体的振动拉曼光谱, 而Zhang等^[19]利用空气激光发展了一种高灵敏度的相干拉曼光谱技术, 实现了大气中温室气体浓度的定量检测、多组分同时探测和 CO_2 同位素识别, 探测灵敏度达到0.03%的水平, 最小信号抖动达到2%的水平.

本文回顾了近期基于空气激光的远程高分辨光谱探测研究. 首先简单介绍空气激光的种类和产生机制, 然后介绍空气激光在远程光谱探测中的研究进展, 并讨论这一新型探测手段的诸多独特优势, 最后对未来研究方向做出展望.

2 空气激光

按照增益介质的类型, 空气激光可以分为原子类、分子类、离子类三种. 原子类空气激光主要以空气中含量较多的氮气或氧气分子解离产生的氮、氧原子以及空气中含量甚微的稀有气体为增益介质^[5,20,21]. 这类激光通常采用紫外光泵浦, 通过双光子吸收实现激光跃迁能级的粒子数反转, 增益寿命较长. 分子类激光主要是以空气中的氮气分子为增益介质^[4,22–24], 通过激发态氮原子或者热电子碰撞激

发实现粒子数反转. 由于氧气的猝灭作用, 在空气中产生的氮分子激光信号通常较弱. 离子类空气激光主要以强场光电离产生的氮分子离子作为增益介质, 其物理机制颇受争议, 因此激起了强场科学领域研究者极大的兴趣^[6,25–35]. 就远程遥感而言, 由于 N_2^+ 激光产生时伴随的原子分子相干激发, 非常适用于具有高灵敏度和信噪比的相干光谱探测, 并得益于 N_2^+ 激光独特的时空相干特性, 有望进一步提升基于相干拉曼光谱的大气遥感探测灵敏度和信噪比.

图1给出了中心波长为428 nm的 N_2^+ 激光典型时空特征^[17]. 从图1(a)可以看到, N_2^+ 激光的光谱线宽极窄(约 2 cm^{-1}), 且具有良好的空间指向性. 与此同时, N_2^+ 激光具有独特的不对称时域波形(见图1(b)): 激光脉冲具有较为陡峭的上升沿和缓慢的下降沿, 脉冲半高全宽为12 ps, 接近傅里叶变换极限. 此外, N_2^+ 激光的产生滞后于高功率飞秒驱动光场. 这些特性使得基于 N_2^+ 激光的相干拉曼光谱可以大大抑制非共振四波混频效应, 实现高相干性、高分辨率和高信噪比的远程光谱探测.

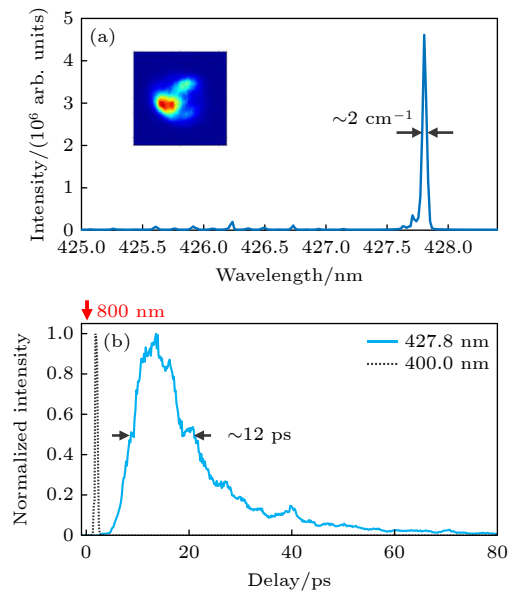


图1 N_2^+ 激光的时空特性^[17] (a) 中心波长为428 nm的 N_2^+ 激光光谱, 插图为 N_2^+ 激光的远场光斑形状; (b) N_2^+ 激光的时域波形, 红色箭头标明800 nm驱动激光脉冲入射时刻

Fig. 1. Spectral-temporal profiles of N_2^+ lasing^[17]: (a) N_2^+ laser spectrum with the central wavelength of 428 nm, the inset is the far-field profile of N_2^+ laser; (b) N_2^+ laser temporal profile with the red arrow denoting the timing of the 800 nm driving pulse.

3 基于空气激光的远程光谱探测

Zhang 等^[36]于 2013 年展示了基于空气激光探测分子转动相干性的重要应用, 实验上发现 N_2^+ 激光强度会随分子轴取向变化产生周期性调制, 并从 N_2^+ 激光光谱解构分子转动量子波包演化. 2014 年, Ni 等^[16]利用高功率中心波长为 800 nm 飞秒激光脉冲在纯氮气中驱动产生了 N_2^+ 激光, 并首次在 N_2^+ 激光光谱中观测到了中性氮分子的转动拉曼信号, 从激光到拉曼散射转换效率高达 0.8%. 这一简单有效的方法推动了空气激光在大气遥感中的应用. 实验产生的 N_2^+ 激光光谱和 N_2 拉曼散射光谱如图 2 所示.

随后 Liu 等^[17]利用空气激光产生了高阶级联拉曼散射, 其实验原理包含 N_2^+ 激光产生和相干拉曼散射两步, 基本实验光路如图 3(a) 所示. 首先将一束高功率近红外 (800 nm) 激光脉冲通过倍频晶体产生二倍频信号, 然后将基波和倍频波同时聚焦到充满氮气的气体盒子中, 用以产生高亮度中心波长为 428 nm 的 N_2^+ 激光信号. 随后将 N_2^+ 激光和剩余的泵浦光一起聚焦到拉曼散射气体中, 在飞秒泵

浦光作用下分子多个转动能级发生非共振跃迁, 形成分子相干转动波包. N_2^+ 激光进而与分子相干转动波包作用, 产生高阶级联拉曼散射. 图 3(b) 是利用以上方案在不同气压 CO_2 气体中产生的高阶转动拉曼散射光谱, 产生的拉曼频移大于 2000 cm^{-1} , 对应数十个拉曼级次和数百个拉曼边带. 由于这一方案采用单束飞秒激光脉冲, 所产生的空气激光与泵浦激光空间自然重合, 同时注入倍频光可以大大增强空气激光强度, 再结合空气激光本身的窄线宽和高相干度等独特优势, 开启了空气激光在非线性光谱领域的重要应用.

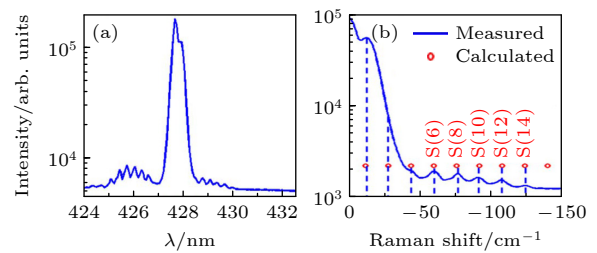


图 2 N_2^+ 激光和 N_2 拉曼散射光谱^[16] (a) N_2^+ 激光光谱; (b) N_2 拉曼散射光谱

Fig. 2. Spectra of N_2^+ laser and N_2 Raman scattering^[16]: (a) N_2^+ laser spectrum; (b) N_2 Raman scattering spectrum.

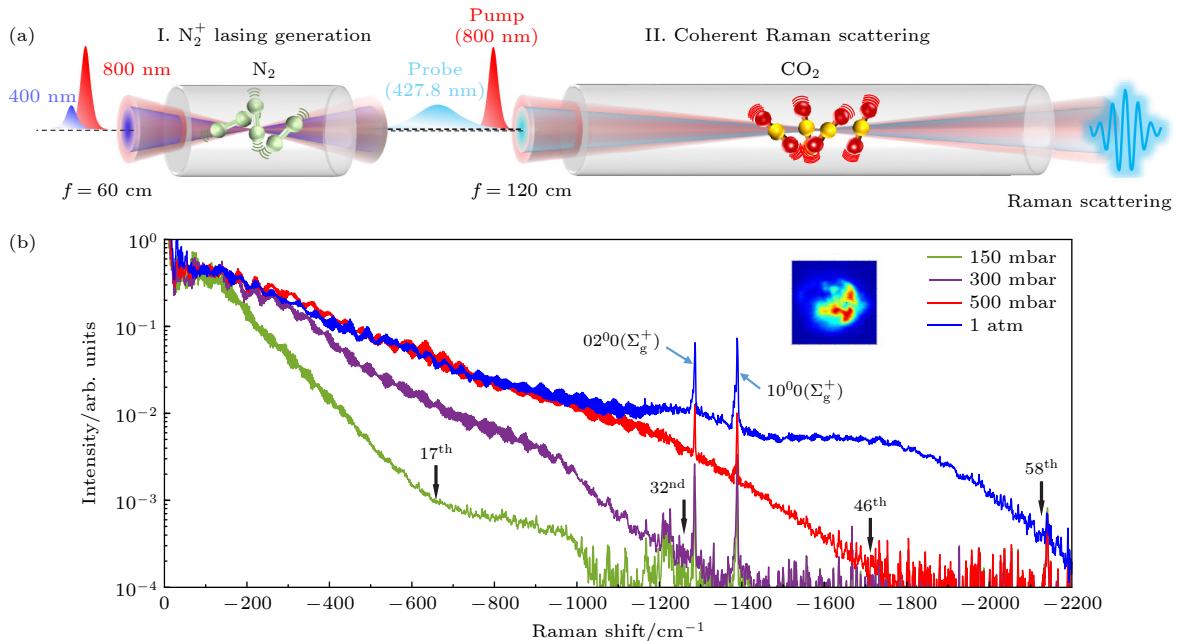


图 3 利用 N_2^+ 激光产生高阶拉曼散射^[17] (a) 实验装置示意图; (b) N_2^+ 激光在不同气压的 CO_2 气体中产生的高阶转动拉曼散射光谱, 插图为 1 atm (1 atm = 1.013×10^5 Pa) 下的拉曼散射信号空间光斑形状

Fig. 3. High-order cascaded Raman scattering induced by N_2^+ laser^[17]: (a) Experimental schematic; (b) measured high-order rotational Raman scattering spectra at various gas pressures of CO_2 , inset shows the spatial profile of Raman signals at 1 atm (1 atm = 1.013×10^5 Pa).

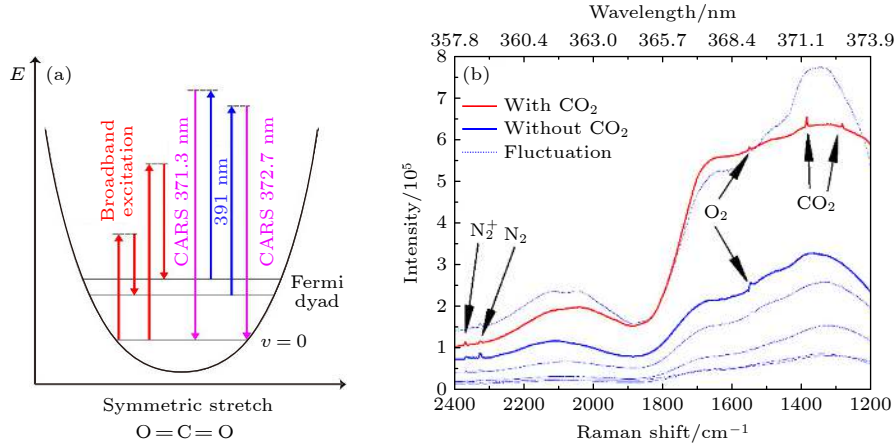


图 4 N_2^+ 激光在 CO_2 中产生拉曼散射^[18] (a) CO_2 中对应的拉曼跃迁能级图; (b) N_2 , N_2^+ , O_2 和 CO_2 的拉曼散射光谱
Fig. 4. Raman scattering induced by N_2^+ laser: (a) Relevant Raman transition levels in CO_2 ; (b) Raman scattering spectra of N_2 , N_2^+ , O_2 and CO_2 .

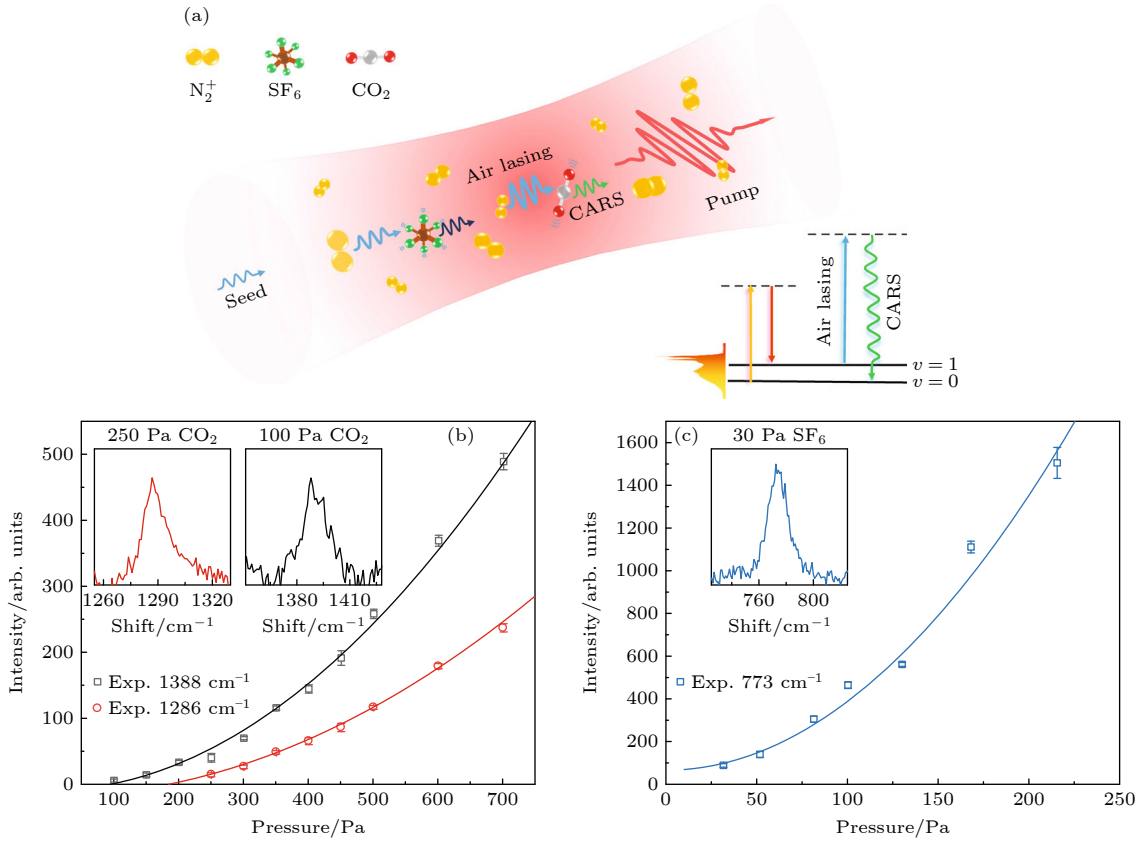


图 5 空气激光辅助相干拉曼散射^[19] (a) 空气激光和相干拉曼散射产生机制示意图; (b), (c) 相干拉曼信号强度与气体浓度的定量关系, 插图为最小浓度下测得 CO_2 和 SF_6 的拉曼信号
Fig. 5. Air-lasing based coherent Raman scattering^[19]: (a) Generation scheme of air-lasing and coherent Raman scattering; (b), (c) intensity of Raman signal as a function of gas pressure, inset shows the measured Raman signals of CO_2 and SF_6 at the minimum pressures.

近期, Zhao 等^[18] 将高功率飞秒激光聚焦在空气中成丝, 基于飞秒光丝非线性增强同时产生高强度 N_2^+ 激光和谱宽超过多个分子振动能级跃迁的超连续谱白光. 通过将待测气体喷射到飞秒光丝附近, 在超连续谱白光和 N_2^+ 激光的共同作用下, 实验

中测量了多种分子包括 N_2 , O_2 , CO_2 和 CH_4 的振动拉曼散射光谱. 图 4(a) 给出 CO_2 分子相干振动拉曼散射的能级跃迁结构, 超连续白光和激光分别对应振动能级激发光和探测光. 图 4(b) 展示了实验测得的超连续谱白光光谱和有无 CO_2 时对应的

拉曼散射光谱结构.

近期, Zhang 等^[19] 发展了空气激光辅助的相干拉曼光谱技术, 其基本原理如图 5(a) 所示. 飞秒激光与空气的极端非线性作用, 一方面激发空气分子的光学增益, 实现了 1000 倍以上的种子放大, 产生了波长为 428 nm、线宽为 13 cm^{-1} 的 N_2^+ 激光. 同时, 飞秒激光在大气中非线性传输产生超连续光谱, 将频谱带宽拓展到 3800 cm^{-1} , 比入射光谱宽 1 个数量级以上, 足以激发空气中大部分污染物分子和温室气体的相干拉曼振动. 当 N_2^+ 激光遇到相干振动的分子, 会产生高效相干拉曼散射, 从拉曼散射光谱强度就可以反推环境气体中的各种分子成分及其浓度. 图 5(b), (c) 分别给出了实验测得的 CO_2 分子和 SF_6 分子相干拉曼散射强度随气体浓度的定量关系. 插图中分别给出了在最小浓度下两种分子的相干拉曼散射信号光谱, 可以看出其仍然具有较好的信噪比. 此外, 得益于空气激光内禀的窄光谱线宽, 空气激光辅助的相干拉曼光谱技术还可以很好地分辨 CO_2 同位素分子.

4 讨 论

基于空气激光的远程光谱探测具有诸多独特优势. 首先, 相比如传统的线性光学方案, 空气激光远程探测是一个高度相干过程, 导致散射光具有较高强度和良好方向性, 极大地增强接收效率^[37,38]. 其次, 相比于常见的非线性光谱学手段, 如四波混频, 受激拉曼散射, 双光子吸收等, 空气激光远程探测可以只用单束激光激发, 激发光和探测光在远程自动产生并且时空高度重合, 避免了多波长激光远程激发时难以精确控制的时空重合难题. 此外, 就 N_2^+ 激光而言, 其产生过程中伴随的原子分子相干激发使得激光输出的时频信息带有鲜明的量子相干性特征, 比如超辐射类似的辐射延时^[39], 非对称的时域波形^[17,25], 近零色散的频谱分布^[40] 以及分子相干波包调制的激光强度^[41,42]. 这些特征导致 N_2^+ 激光在基于空气激光的相干光谱探测中发挥了不可替代的作用, 并为有望突破现有的远程光谱探测灵敏度和信噪比极限.

5 结 论

处于强激光场中的原子或分子能够在远小于

光周期的极短时间内, 以隧穿的方式被光场迅速电离, 这一现象为阿秒科学奠定了基础. 而空气激光现象的揭示, 尤其是 N_2^+ 激光的发现表明强场光电离过程往往还伴随着分子离子或中性分子的激发, 导致自发甚至受激的光辐射. 这一意想不到的现象拓展了现有强场原子分子物理的研究范畴. 在强场超快条件下开展远程空气激光研究不仅对强场分子物理、超快非线性光学、量子光学等基础研究具有重要意义, 而且为光学遥感提供了一条全新的技术途径. 空气激光具有高准直度、高相干性和高强度等优点, 在大气痕量污染物遥感、爆炸物远程探测、核泄漏预警等环境科学和国防安全领域具有广阔的应用前景. 尽管现有的空气激光远程探测研究仍局限于高稳定性的实验室条件, 但相信随着相关基础研究的深入以及高功率飞秒激光脉冲技术的日臻完善, 大气层中的空气激光远程遥感探测在不久的将来会成为现实.

感谢华东师范大学刘招祥博士提供相关素材.

参考文献

- [1] Yao J, Cheng Y 2020 *Chin. J. Laser* **47** 0500005 (in Chinese) [姚金平, 程亚 2020 中国激光 **47** 0500005]
- [2] Chin S L, Xu H L, Cheng Y, Xu Z Z, Yamanouchi K 2013 *Chin. Opt. Lett.* **11** 013201
- [3] Polynkin P, Cheng Y 2018 *Air Lasing* (Cham: Springer International Publishing) p139
- [4] Luo Q, Liu W W, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **76** 337
- [5] Dogariu A, Michael J B, Scully M O, Miles R B 2011 *Science* **331** 442
- [6] Yao J P, Zeng B, Xu H L, Li G H, Chu W, Ni J L, Zhang H S, Chin S L, Cheng Y, Xu Z Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 051802
- [7] Hemmer P R, Miles R B, Polynkin P, Siebert T, Sokolov A V, Sprangle P, Scully M O 2011 *P. Natl. Acad. Sci. USA* **108** 3130
- [8] Traverso A J, Sanchez-Gonzalez R, Yuan L Q, Wang K, Voronine D V, Zheltikov A M, Rostovtsev Y, Sautenkov V A, Sokolov A V, North S W, Scully M O 2012 *P. Natl. Acad. Sci. USA* **109** 15185
- [9] Malevich P N, Kartashov D, Pu Z, Alisauskas S, Pugzlys A, Baltuska A, Giniunas L, Danielius R, Zheltikov A, Marangoni M, Cerullo G 2012 *Opt. Express* **20** 18784
- [10] Malevich P N, Maurer R, Kartashov D, Alisauskas S, Lanin A A, Zheltikov A M, Marangoni M, Cerullo G, Baltuska A, Pugzlys A 2015 *Opt. Lett.* **40** 2469
- [11] Yuan L Q, Liu Y, Yao J P, Cheng Y 2019 *Adv. Quantum Tech.* **2** 1900080
- [12] Braun A, Korn G, Liu X, Du D, Squier J, Mourou G 1995 *Opt. Lett.* **20** 73
- [13] Couairon A, Mysyrowicz A 2007 *Phys. Rep.* **441** 47
- [14] Fu Y, Cao J C, Yamanouchi K, Xu H L 2022 *Ultrafast Sci.* **4** 9867028

- [15] Zhang F B, Xie H Q, Yuan L, Zhang Z H, Fu B T, Yu S P, Li G H, Zhang N, Lu X, Yao J P, Cheng Y, Xu Z Z 2022 *Opt. Lett.* **47** 481
- [16] Ni J L, Chu W, Zhang H S, Zeng B, Yao J P, Qiao L L, Li G H, Jing C R, Xie H Q, Xu H L, Cheng Y, Xu Z Z 2014 *Opt. Lett.* **39** 2250
- [17] Liu Z X, Yao J P, Zhang H S, Xu B, Chen J M, Zhang F B, Zhang Z H, Wan Y X, Chu W, Wang Z H, Cheng Y 2020 *Phys. Rev. A* **101** 043404
- [18] Zhao X D, Nolte S, Ackermann R 2020 *Opt. Lett.* **45** 3661
- [19] Zhang Z H, Zhang F B, Xu B, Xie H Q, Fu B T, Lu X, Zhang N, Yu S P, Yao J P, Cheng Y, Xu Z Z 2022 *Ultrafast Sci.* **2** 9761458
- [20] Laurain A, Scheller M, Polynkin P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 253901
- [21] Dogariu A, Miles R B 2016 *Opt. Express* **24** A544
- [22] Kartashov D, Ališauskas S, Andriukaitis G, Pugzlys A, Shneider M, Zheltikov A, Chin S L, Baltuska A 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033831
- [23] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P J, Houard A, Mysyrowicz A 2014 *Opt. Express* **22** 12750
- [24] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P J, Houard A, Couairon A, Mysyrowicz A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 063003
- [25] Yao J P, Li G H, Jing C R, Zeng B, Chu W, Ni J L, Zhang H S, Xie H Q, Zhang C J, Li H L, Xu H L, Chin S L, Cheng Y, Xu Z Z 2013 *New J. Phys.* **15** 023046
- [26] Liu Y, Ding P J, Lambert G, Houard A, Tikhonchuk V, Mysyrowicz A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 133203
- [27] Xu H L, Lötstedt E, Iwasaki A, Yamanouchi K 2015 *Nat. Commun.* **6** 8347
- [28] Yao J P, Jiang S C, Chu W, Zeng B, Wu C Y, Lu R F, Li Z T, Xie H Q, Li G H, Yu C, Wang Z S, Jiang H B, Gong Q H, Cheng Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 143007
- [29] Liu Y, Ding P J, Ibrakovic N, Bengtsson S, Chen S H, Danylo R, Simpson E R, Larsen E W, Zhang X, Fan Z Q 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 203205
- [30] Liu Z X, Yao J P, Chen J M, Xu B, Chu W, Cheng Y 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 083205
- [31] Britton M, Laferrière P, Ko D H, Li Z Y, Kong F Q, Brown G, Naumov A, Zhang C M, Arissian L, Corkum P B 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 133208
- [32] Yao J P, Chu W, Liu Z X, Chen J M, Xu B, Cheng Y 2018 *Appl. Phys. B* **124** 73
- [33] Ando T, Lötstedt E, Iwasaki A, Li H L, Fu Y, Wang S Q, Xu H L, Yamanouchi K 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 203201
- [34] Li H L, Hou M Y, Zang H W, Fu Y, Lotstedt E, Ando T, Iwasaki A, Yamanouchi K, Xu H L 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 013202
- [35] Li H X, Lötstedt E, Li H L, Zhou Y, Dong N N, Deng L H, Lu P F, Ando T, Iwasaki A, Fu Y 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 053201
- [36] Zhang H S, Jing C R, Yao J P, Li G H, Zeng B, Chu W, Ni J L, Xie H Q, Xu H L, Chin S L, Yamanouchi K, Cheng Y, Xu Z Z 2013 *Phys. Rev. X* **3** 041009
- [37] Jing C R, Zhang H S, Chu W, Xie H Q, Ni J L, Zeng B, Li G H, Yao J P, Xu H L, Cheng Y, Xu Z Z 2014 *Opt. Express* **22** 3151
- [38] Jing C R, Yao J P, Li Z T, Ni J L, Zeng B, Chu W, Li G H, Xie H Q, Cheng Y 2015 *J. Phys. B* **48** 094001
- [39] Li G H, Jing C R, Zeng B, Xie H Q, Yao J P, Chu W, Ni J L, Zhang H S, Xu H L, Cheng Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033833
- [40] Chen J M, Yao J P, Zhang H S, Liu Z X, Xu B, Chu W, Qiao L L, Wang Z H, Fatome J, Faucher O, Wu CY, Cheng Y 2019 *Phys. Rev. A* **100** 031402
- [41] Xie H Q, Zeng B, Li G H, Chu W, Zhang H S, Jing C R, Yao J P, Ni J L, Wang Z H, Li Z T 2014 *Phys. Rev. A* **90** 042504
- [42] Zeng B, Chu W, Li G H, Yao J P, Zhang H S, Ni J L, Jing C R, Xie H Q, Cheng Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 042508

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Air-lasing high-resolution spectroscopy for atmospheric remote sensing^{*}

Zhang Hai-Su¹⁾ Qiao Ling-Ling²⁾ Cheng Ya^{1)2)†}

1) (*State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200241, China*)

2) (*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*)

(Received 5 October 2022; revised manuscript received 14 November 2022)

Abstract

Air-lasing is a cavityless coherent radiation generated in free space from air constituents as gain medium, featuring high collimation, high coherence, and high intensity. Benefited from the long-range filamentation of high-power ultrashort laser pulses propagating in air, the air-lasing can be induced remotely, providing an ideal light source for atmospheric remote sensing and chemical species-resolved detection. Owing to the coherent atomic/molecular excitation process accompanied with the generation of air laser, remote sensing based on air-lasing has high spectral resolution and high detection sensitivity, which recently proved to be a powerful tool for important applications such as in trace molecule detection, greenhouse gas monitoring and industrial pollutant detection. In this short review, the physical mechanism of air lasing is briefly introduced, and various applications of air laser remote sensing are reviewed emphatically, and the future research is prospected.

Keywords: remote sensing, air lasing, Raman spectroscopy, high field laser physics

PACS: 34.80.Gs, 42.50.Hz, 42.55.Lt, 42.65.Re

DOI: [10.7498/aps.71.20221913](https://doi.org/10.7498/aps.71.20221913)

^{*} Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2019YFA0705000) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12192251, 12134001).

[†] Corresponding author. E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn



空气激光：面向大气遥感的高分辨光谱技术

张海粟 乔玲玲 程亚

Air-lasing high-resolution spectroscopy for atmospheric remote sensing

Zhang Hai-Su Qiao Ling-Ling Cheng Ya

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233401 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221913

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221913>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强场X射线激光物理

High field X-ray laser physics

物理学报. 2021, 70(8): 084101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210096>

二硫化铼的原位高压偏振拉曼光谱

In-situ high pressure polarized Raman spectroscopy of rhenium disulfide

物理学报. 2022, 71(14): 140702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220053>

外电场极化对纳米氧化锌拉曼活性及气敏性能的影响

Polarization effect of external electric field on Raman activity and gas sensing of nano zinc oxide

物理学报. 2018, 67(14): 140701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180182>

拉曼光谱研究退火氧化镍中二阶磁振子散射增强

Enhancement of two-magnon scattering in annealed nickel oxide studied by Raman spectroscopy

物理学报. 2021, 70(16): 167201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210454>

基于拉曼-布里渊散射的海水盐度精细探测遥感方法

Method of remotely sensing seawater salinity fine detection based on Raman Brillouin scattering

物理学报. 2021, 70(22): 229201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210201>

利用地基高分辨率傅里叶变换红外光谱技术探测大气氟氯烃气体 CCl_2F_2 的时空变化特征

Detection of atmosphere CCl_2F_2 spatio-temporal variations by ground-based high resolution Fourier transform infrared spectroscopy

物理学报. 2021, 70(20): 200201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210640>

专题: 阿秒物理

固体高次谐波产生、调控及应用*

汪洋 刘煜 吴成印†

(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)

(2022 年 7 月 4 日收到; 2022 年 8 月 5 日收到修改稿)

基于超快强激光与物质相互作用的高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 提供了非微扰区光与物质相互作用的研究平台, 同时也是台式化极紫外光源和阿秒脉冲的主要产生途径. 非微扰区固体 HHG 涉及超快强场物理、凝聚态物理、材料科学和信息科学等领域的核心内容, 自 2011 年首次在实验中观察到以来, 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿. 本综述从一个实验工作者的角度, 总结了固体 HHG 的研究进展和重要应用. 首先通过对比高次谐波 (high-order harmonic, HH) 产率和截止能量对驱动激光参数的依赖关系, 展示固体 HHG 与气体 HHG 截然不同的特性. 重点介绍固体 HHG 调控和应用方面的进展, 包括通过设计靶材结构或者激光光场实现对 HH 产率、偏振、时空分布等精密调控, 以及固体 HH 谱学技术在材料结构表征和超快电子动力学研究等领域的应用. 最后对固体 HHG 的未来发展进行了展望.

关键词: 超快激光, 强场物理, 高次谐波产生

PACS: 42.65.Ky, 42.65.-k, 42.62.Fi

DOI: 10.7498/aps.71.20221319

1 引言

超短超强激光技术的发展, 为人类实时测量和操控物质中电子的高度非线性和非微扰行为提供了重要工具. 高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 作为一种极端光学上转换手段^[1,2], 包含丰富的物理, 具有重要的应用, 受到人们的广泛关注. 气体 HHG 可以由所谓的“三步模型”进行描述^[3,4]: 电子隧穿激光电场和库仑场形成的势垒发生电离; 电离后的电子在激光电场作用下加速; 当激光光场反向后电离电子又被拉回到母核附近以一定概率与母核复合, 将在电场中获得的能量以光子的形式释放出来. “三步模型”直观描述了气体 HHG 的主要过程及其光谱的主要特征, 气体 HHG 已经成为台式化极紫外软 X 射线光源和阿秒脉冲的主要产生途径^[5,6]. 受限于气体介质的低密度, 气体 HHG 转换效率一般仅为 10^{-6} 左右, 固

体介质因为高原子密度而有望提高其转换效率. 1992 年 Farkas 等^[7] 将中心波长 $1.064 \mu\text{m}$, 脉冲宽度 35 ps 的 P 偏振光以 70° 角掠入射到抛光金样品表面. 如图 1(a) 所示, 在激光传输方向探测到了高达 5 阶的谐波辐射, 这是将 HHG 扩展到凝聚态体系的首次尝试. 然而, 受限金属介质的屏蔽效应和穿透深度, 其转换效率难以进一步提高. 2011 年, Ghimire 等^[8] 用中心波长 $3.25 \mu\text{m}$ 的强中红外激光照射 ZnO 块材单晶, 如图 1(b) 所示, 在激光透射方向观测到高达 25 阶谐波, 这是实验上首次非微扰区测量到固体 HHG. 不同于气体 HHG, ZnO 中 HHG 截止能量对驱动激光的电场强度呈线性依赖关系, 其产率也对驱动激光的椭圆率不敏感, 预示着气体 HHG 理论不能直接应用于固体 HHG. 固体 HHG 涉及到超快强场物理、凝聚态物理、材料科学和信息科学等领域的核心内容, 可以用来探测固体能带结构以及超快电子动力学, 进一步拓宽了超快强场物理和凝聚态物理的研究方向,

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFA0306302) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174011, 11625414) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: cywu@pku.edu.cn

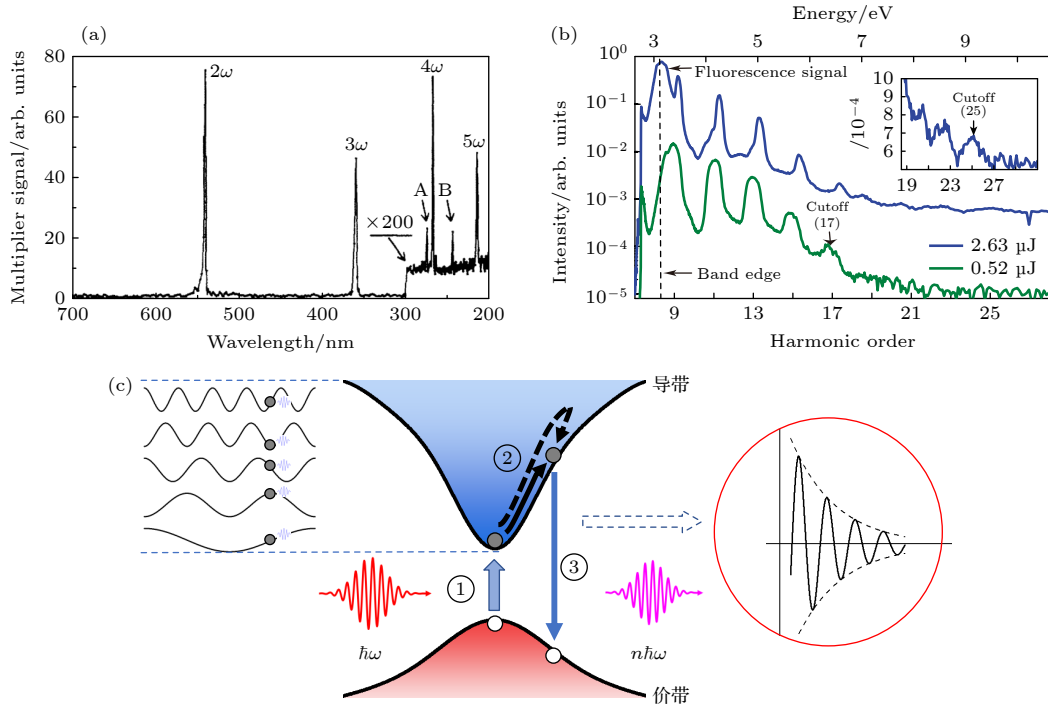


图 1 固体高次谐波 (high-order harmonic, HH) 光谱及其产生机制示意图 (a) 金表面反射 HH 谱^[7]; (b) ZnO 晶体透射 HH 谱^[8]; (c) 固体 HHG 机制示意图

Fig. 1. Solid high-order harmonic (HH) spectrum and schematic diagram of HHG mechanism: (a) Reflection HH spectrum of Au surface^[7]; (b) transmission HH spectrum of ZnO crystal^[8]; (c) schematic diagram of solid HHG mechanism.

也为材料科学和信息科学的发展带来了新的机遇, 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿。

目前实验上从宽带隙介电材料到零带隙新型二维材料等固体材料中都观察到 HHG, 涵盖晶体^[9]、非晶体^[10]、超材料^[11–13]、二维材料^[14–16]、拓扑材料^[17,18]和半金属材料^[19–22]等. 理论上提出了三步模型^[8,23–25]及扩展的三步模型^[26–31]描述固体 HHG. Vampa 等^[24]通过分解带内和带间电流, 提出描述固体 HHG 的“三步模型”. 如图 1(c) 所示, 该模型认为其产生过程可概括为三步: 1) 在超快激光脉冲作用下, 电子从价带最高点进入 (多光子或隧穿) 导带, 并在价带产生对应的空穴, 如箭头①所示; 2) 电子和空穴分别在各自能带被激光电场加速, 非谐性能带促进非谐性带内电流产生, 贡献带内谐波, 如箭头②所示, 其中实线表示短轨道, 虚线表示长轨道, 左侧插图描述能带非谐性分量具体发挥的作用; 3) 电子和空穴在完全退相干前可能再次复合并向外辐射出 HH 光子, 贡献带间谐波, 如箭头③所示, 右侧插图描绘了带间谐波的退相干过程. “三步模型”成功再现了 HHG 截止频率对波长的线性依赖, 并预测二能带模型下截止频率饱和现象, 揭示了固体 HHG 中能带结构所发挥

的作用, 直观地展现固体与气体 HHG 内在的联系与区别, 为后续固体 HHG 的研究及其应用提供了启发. 对“三步模型”的一系列完善, 使模型更符合实际, 包括多能带、布拉格散射和固体中电子离域等特性的影响得到体现. Ikemachi 等^[26]提出了涉及多条能带的“step-by-step”修正, 成功解释了实验中固体 HH 谱独有的多平台特性, 其中, 电子激发前的带内预加速过程首次被考虑. Ghimire 等^[8,25]认为电子在带内加速过程中一旦发生动态布洛赫振荡, 电子与布里渊区边界的布拉格散射将拓展带内谐波光子能量范围, 并预测 HHG 截止频率独立于驱动光波长且线性依赖驱动光电场强度, 后者已被多个实验工作证实^[8,32]. You 等^[27]重点考虑了电子激发后在实空间中与邻近母核的相干重散射, 他们认为无论电子是否与原空穴重新结合, 相干重散射过程都将辐射高能 HH 光子. 其对价电子的敏感依赖性进一步推动了 HHG 在材料表征领域的应用, 取得了丰硕成果^[33]. 此外, Wannier-Bloch 表象^[28,34]、电子-空穴碰撞条件的修正^[30,31]等模型为研究电子离域对固体 HHG 的影响提供了理论工具. 在准粒子形式的“三步模型”框架之外, 惠更斯-菲涅尔图像^[35]补充了电子波动性对固体 HHG 的

影响, 为时间分辨动力学研究提供了可靠时钟标定. 尽管描述固体 HHG 的理论框架得到了完善, 然而一个统一理论的形成仍然面临挑战, 诸如电子关联等多体效应和声子等对 HHG 的影响需要后续更深入的研究. 对于固体 HHG 的讨论已经被一些优秀的综述介绍 [36–39], 本综述从一个实验工作者的角度, 介绍固体 HHG 的特性、调控及应用.

2 固体 HHG 特性

固体中原子紧密排布使电子本征态变为各格点原子轨道的线性叠加, 靶材具有特定点群对称性. 高原子密度、特殊对称性和电子波函数的离域性使固体 HHG 展现出一些与气体中截然不同的性质.

2.1 HHG 截止能量与激光强度依赖关系

气体 HHG 实验使用的驱动激光强度通常在 10^{14} W/cm² 量级 [40,41], 该强度远大于固体靶材的损伤阈值, 图 2(a) 所示为波长 800 nm 激光照射下

不同带隙材料的损伤阈值 [42]. 为了避免材料损伤, 固体 HHG 实验中通常选用波长更长或强度更低的激光进行. 由于固体材料原子密度远高于气体, 固体 HHG 效率显著高于气体介质 [7], 这在很大程度上弥补了长波长和低光强对 HHG 产率的不利影响.

典型的 HH 谱存在平台区和截止区, 平台区表现为在一定波段内各阶次谐波产率基本一致, 而截止区为在一定光子能量以上, 其产率显著下降. 对于气体 HHG, 电子被电离到真空连续态, 其光谱一般不会出现多平台结构. 在固体中, 电子波包可被激发到更高导带, 从而出现多个 HH 光谱平台. Ndabashimiye 等 [32] 在低温下测量了固体氩的 HH 谱, 与相应的气体情况相对比, 固体中观察到了这种多平台结构. 如图 2(b) 所示, 在低激光强度下得到的 HH 谱只有第一平台, 激光强度较高时存在包含 27 阶谐波到 35 阶谐波的第二平台. 多平台性是固体多能带结构的直接反映.

气体 HHG 的截止能量 [43] 满足 $\varepsilon_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$, 其中 U_p 为有质动力能, 与激光波长的二次

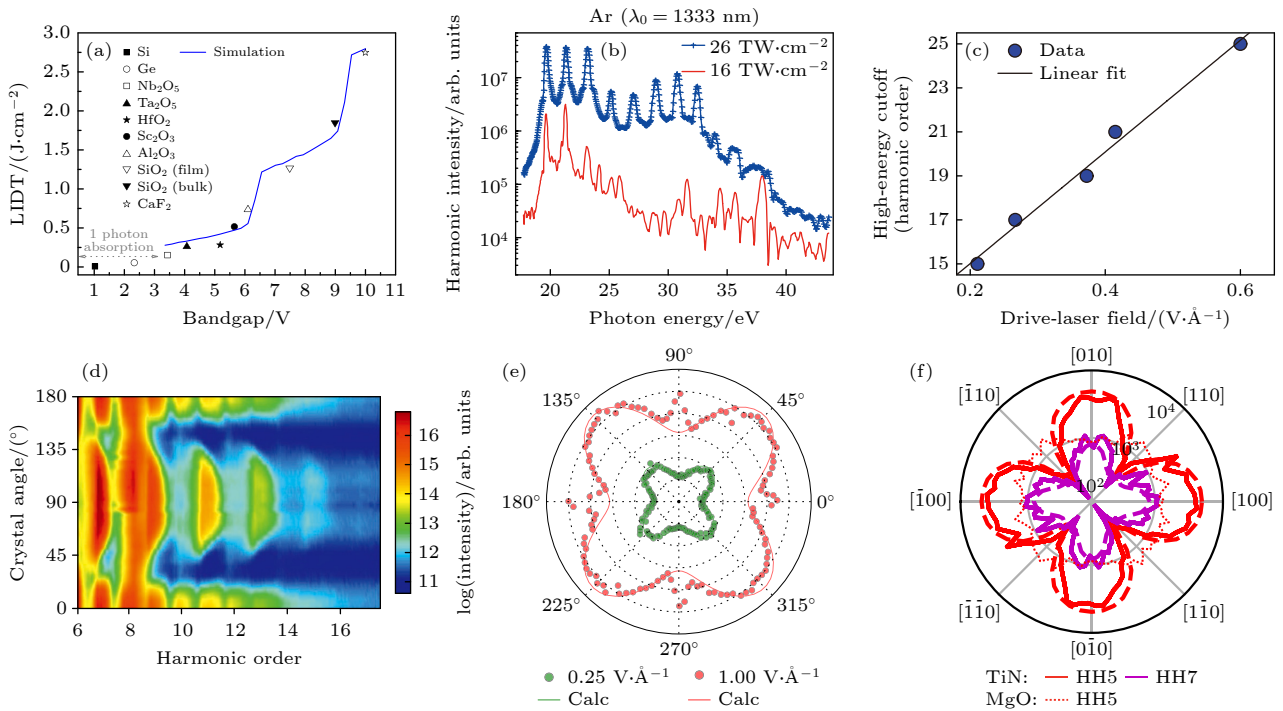


图 2 固体损伤阈值、HH 谱及晶向依赖 (a) 不同带隙固体材料的损伤阈值 [42]; (b) 固体 Ar 的 HHG [32]; (c) ZnO HHG 截止能量与驱动激光场呈线性关系 [8]; (d) ZnO [8], (e) MgO [9], (f) 金属 TiN 薄膜 [46] 固体材料 HHG 的晶向依赖

Fig. 2. Damage threshold and HH spectra in solids with different crystallographic orientations: (a) Damage threshold of solid materials with different bandgaps [42]; (b) high harmonic spectrum of solid Ar [32]; (c) linear dependence of the HHG cutoff energy in ZnO with the driving laser field strength [8]. Crystallographic orientation dependence of solid HHG in solid materials of (d) ZnO [8]; (e) MgO [9]; (f) TiN metallic film [46].

方和激光强度成正比. 不同于气体 HHG, 实验发现固体 HHG 的截止能量与激光电场强度成线性关系^[8], 即正比于激光强度的平方根, 如图 2(c) 所示. 截止能量与场强成线性关系可以通过 Bloch 振荡^[8]、缀饰态^[44] 以及拓展的三步模型^[26–31] 等理论定性解释.

2.2 HHG 产率与晶体晶向以及驱动光椭圆率的依赖关系

固体材料晶面特定的点群对称性, 使不同偏振方向的线偏振驱动光对应不同的布里渊区取向, 导致固体 HHG 具有晶向依赖性, 图 2(d), (e) 分别是实验观测到的 (1120) 面 ZnO^[8] 和 (001) 面 MgO^[9] HHG 晶向依赖. 除了晶体对称性外, 还存在其他机制引起的特殊晶向依赖. You 等^[9] 根据半经典电子实空间运动轨迹的图像解释了 MgO 中 HHG 各向异性, 如图 2(e) 所示, 当电子运动轨迹连接不同格点时 HHG 产率显著增加. Langer 等^[45] 通过化学键方向解释 GaSe 中 HHG 晶向依赖. 除半导体材料外, 零带隙石墨烯和初始导带非空的金属材料 HHG 也存在特殊的晶向依赖. 对于石墨烯, 由位于各向同性的狄拉克锥的零质量狄拉克电子贡献, 其 HH 产率不随驱动光偏振方向而改变^[19]. 最近, Korobenko 等^[46] 实验上发现金属 TiN 膜 HHG 晶向依赖与其费米面对称性不同, 如图 2(f), 具体机制有待进一步研究.

对于气体 HHG, 根据“三步模型”, 电子在椭圆偏光驱动下的横向位移减小了其与母核的复合概率, 导致其产率随驱动光椭圆率增加显著下降^[47]. 而对于固体, 高原子密度和载流子的离域性使晶格散射和邻位复合成为可能, 从而影响 HHG 的椭圆率依赖. 稀有气体固体 HHG 椭圆率依赖与气体相差不大^[32], 这与靶材弱范德瓦耳斯相互作用引起的电子弱离域性相关. 与之相对, 一般半导体如 ZnO 中 HHG 椭圆率依赖较弱, 其产率只有在激光接近圆偏振时才显著降低^[8,29]. 更令人惊诧的是, 一些具有拓扑表面态的固体材料产生了反常椭圆率依赖, 如拓扑绝缘体 Bi₂Se₃, 7 阶谐波在圆偏时最强, 线偏时最弱^[48], 与“三步模型”的预测结果大为不同. 除块材外, 二维材料由于带隙的层数依赖特点等, 其 HHG 与椭圆率之间也存在特殊联系. 对于有带隙的少层 MoS₂, Lou 等^[49] 实验发现 HHG 椭圆率依赖性与 ZnO 等一般块材类似, 且阶次越高, 产率受椭圆

率调制作用越强, 这种依赖性近乎层数无关的 (对 1—3 层). 而对零带隙的石墨烯, 当驱动光从线偏变为椭圆偏振 (椭圆率 $\varepsilon = 0.32$) 时, 7 阶和 9 阶谐波强度得到增强, 变为圆偏光时, 所有 HH 信号消失, 研究者们用零带隙引起的半金属化结合全量子模拟解释了这种特殊的椭圆率依赖^[19].

2.3 长程有序性对固体 HHG 的影响

Bloch 函数是晶体周期势哈密顿量的本征函数, 带内机制和带间机制图像均与其密切相关. 作为对 HHG 机制的有效补充, 非晶体系可以探索长程有序性对其的影响. 熔融石英在保持固体高原子排列密度的同时, 缺乏长程周期性, 是研究这一问题的理想材料. You 等^[50] 通过对比熔融石英和单晶石英的 HH 谱, 发现由于宏观中心反演对称性, 熔融石英光谱出现了由奇阶信号组成的平台区, 而单晶石英则出现了两个由奇偶信号共同构成的明显分离的平台区, 与其多导带结构和中心反演对称性破缺相对应. 根据经典电子运动轨迹模拟不同波长下 HH 产率的场强依赖关系, 当电子运动范围不超过相关长度时两者光谱无明显区别, 理清了长程有序性对 HHG 影响的边界. 进一步, Jürgens 等^[51] 通过实验手段分辨导带注入电流的影响, 证明其对低阶谐波的贡献不因无序而关闭. 除了熔融石英, 液态介质因为短程有序而长程无序的特性, 是研究长程有序性对 HHG 影响的另一理想平台. 目前, 水^[52–54] 和醇类^[54,55] 的 HHG 已被实验测量, 其 HH 阶次与截止能量等特性与熔融石英较接近. 除了以上常规凝聚态物质外, 对各类准晶的 HHG 研究反映了长程有序性影响的不同侧面^[56].

3 固体 HHG 精密调控

受限于靶材的各向同性, 气体 HHG 调控通常借助控制驱动光场来实现. 固体靶材的多样性, 以及先进的掺杂和微纳加工技术, 为固体 HHG 精密控制提供了丰富的自由度, 既可以通过光场控制, 也可以靶材控制来实现.

3.1 靶材控制

对于固体材料, 尤其是晶体介质, 具有规则原子排列. 因此, 利用不同靶材固有性质或对靶材进行加工设计, 均能方便高效地精密调控固体 HHG.

3.1.1 晶向控制

晶体材料具有各向异性原子排列, 不同晶向的物性不尽相同, 固体 HHG 晶向依赖是晶体各向异性的一个具体体现. 如前文所叙述的原子排布将增强特殊实空间轨迹的 HHG 产率, 此外, 晶体晶向可能影响 HH 偏振甚至时间结构. Langer 等^[45]用太赫兹激光脉冲照射 GaSe 块状单晶, 研究 HHG 与材料晶向的关系. 结果发现: 晶体对称性不仅影响其能量转换效率, 还选择性地旋转了偶阶信号的偏振, 提供了一种控制偶阶和奇阶 HH 之间偏振夹角的手段. 通过调整晶向并选择特定的偏振, HH 频率梳可以实现 ν 和 2ν 之间切换 (ν 为基频光的频率). 该研究使基于固体 HHG 的载波控制成为可能, 为固体阿秒光子学开拓了新视角.

3.1.2 纳米结构设计

基于高重复频率 HHG 极紫外光源在材料表征等方面应用潜力巨大^[57], 但是基于气体 HHG 获取高重复频率极紫外光源面临很大挑战^[58,59]. 主要原因是气体 HHG 对驱动光源的单脉冲能量要求很高, 而高重复频率飞秒激光单脉冲能量通常较低, 难以驱动气体 HHG. 固体 HHG 的优势之一是可以透过微纳结构增强局域光场, 极大降低对驱动光单脉冲能量要求, 使基于纳米结构增强的高重复频率极紫外光源成为可能. Han 等^[11]研究表明, 金-蓝宝石纳米结构中的表面等离子体元增强了局域光场, 增强非微扰 HHG. 图 3(a) 所示为金-蓝宝石纳米结构扫描电子显微镜 (SEM) 图像, 由于局域场增强, 即使使用 75 MHz 重复频率的飞秒振荡激光泵浦, 也观察到高达 13 阶的谐波, 如图 3(b) 所示. 随后, Vampa 等证明金纳米天线^[60]和介质超表面^[12]可以将 Si 单晶 HHG 增强至少 1 个量级. Yang 等^[61]通过近零介电常数材料 (epsilon-near-zero, ENZ), 使得材料内部等效光强增大 16 倍, 显著提高 HHG 产率. 同时, ENZ 材料辅助的 HH 光谱表现出明显的红移和展宽, 这被认为是光致电子加热和伴随的 ENZ 材料内波长随时间的变化造成的. ENZ 材料的应用为固体 HHG 的研究提供了全新的平台, 为其时间和光谱特性控制提供了可能.

3.1.3 界面工程

极紫外光源一般通过超环面反射镜以大角度掠入射方式进行反射聚焦, 但紧凑且高质量聚焦光

斑的获得比较困难. 通过样品界面设计可以同时实现固体 HH 产生、传播和特定阶次谐波聚焦. Sivis 等^[13]通过在掺杂硅中集成菲涅尔波带片 (Fresnel zone plate, FZP), 实现了对特定阶次谐波的空间聚焦. 图 3(c) 展示了通过 FZP 中增强的三次谐波信号成像结果, 插图是 FZP 模式 (较暗的区域) 的 SEM 图像. 通过沿激光传输方向空间扫描, 得到其空间分布性质, 如图 3(d), (e) 所示. 结果显示, FZP 设计成功实现对 3 阶和 5 阶谐波的高质量聚焦, 谐波自聚焦光斑尺寸达到 1 μm . 可以预见, 通过如 SiO_2 和 MgO 等宽带隙材料的应用, 固体 HH 聚焦控制可以推广到极紫外波段, 为未来紧凑极紫外光源开发和片上集成器件提供了新方向. 虽然微纳结构阵列设计可以控制 HH 空间特性, 但是微纳结构本身被低损伤阈值限制, 掺杂超表面克服了这一限制, 有望更进一步应用. 以超表面和能带工程^[62]为代表的界面修饰为固体 HHG 的多自由度控制和光谱定制提供了一个广阔的平台.

3.2 光场控制

除了通过固体靶材对 HHG 进行调控, 气体中的光场调控手段同样适用于固体. 对于 HHG 这样一个亚光学周期内的极度非线性光发射过程, 其行为敏感依赖于电场波形. 通过少周期脉冲的载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 或者双色合成激光场, 其子周期干涉动力学可以被有效控制. 少周期光驱动固体 HHG, 其光谱敏感依赖于驱动光的 CEP^[10,44], 如图 4(a) 所示. 理论上, CEP 依赖的带隙上 HH 谱可以通过激光场缀饰的带间发射解释. 对于两能带系统, 当光子能量与缀饰态的瞬时能量差匹配时, 即发射 HH 光子, 其中光场缀饰态之间的瞬时能量差由 $\varepsilon(t) = 2\sqrt{[\mu A(t)]^2 + (\omega_0/2)^2}$ 来表示^[63], μ 为跃迁矩阵元、 $A(t)$ 为光场动态矢势、 ω_0 表示带隙. 带间谐波的亚光学周期啁啾和发射对称性破缺, 使得相邻半周期相同光子能量发射偏离 $T/2$ 周期性, 由此引入的干涉效应使对应阶次光谱形状发生改变. 这种干涉受相邻半周期光场波形控制, 从而产生 CEP 依赖光谱干涉结构. 对于由动态布洛赫振荡导致的带内谐波, 由于所有 HH 同步发射, 很难被观察到这种 CEP 对 HHG 干涉的调制^[64].

CEP 依赖 HHG 展示了通过光场控制 HHG

的亚周期干涉的可能性, 相比于超短脉冲 CEP 调控, 双色倍频激光场为 HHG 精确控制提供更多相互独立的调控自由度, 如相对激光强度、相对相位和偏振控制等. Vampa 等^[65,66]采用平行双色倍频场打破了单色长脉冲固有的亚周期时间反演对

称性, 形成了分别由光场正负半周期 HHG 构成的非平衡迈克耳孙干涉仪. 通过扫描光场相对相位, HHG 时域干涉情况受到周期性调制, 如图 4(b) 所示. 周期性干涉调制构成了刻画 HHG 啁啾和能带信息的特征指纹.

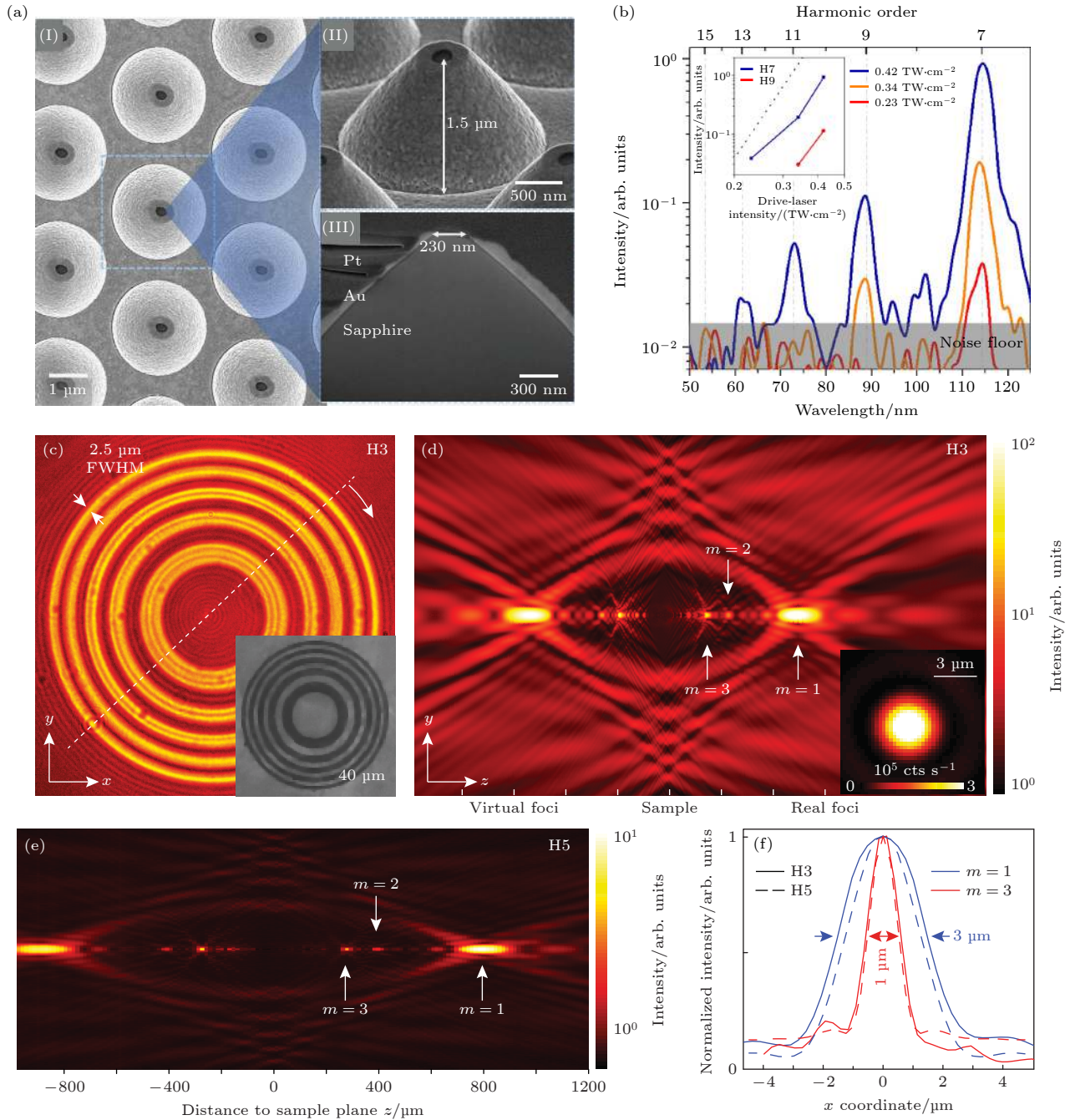


图 3 纳米结构和界面工程控制 HHG. (a), (b) 金属-蓝宝石锥增强 HHG^[11] (a) 蓝宝石锥的扫描电镜显微图像; (b) 测量的 HH 光谱. (c)–(f) 菲涅尔波带片 HHG^[13] (c) 在样品平面记录的三次谐波发射模式; (d) 三次和 (e) 五次谐波聚焦扫描; (f) 焦点强度剖面形状

Fig. 3. Control of solid HHG using nanostructure and interface engineering. (a), (b) Enhancement of HHG on a metal-sapphire nanotip^[11]; (a) Scanning electron microscopy (SEM) image of the tips; (b) measured HH spectra. (c)–(f) HHG from Fresnel zone plate (FZP)^[13]: (c) Third-harmonic emission pattern recorded at the sample plane; (d) third and (e) fifth harmonic focus scanning as a distance to sample plane; (f) focus intensity profiles.

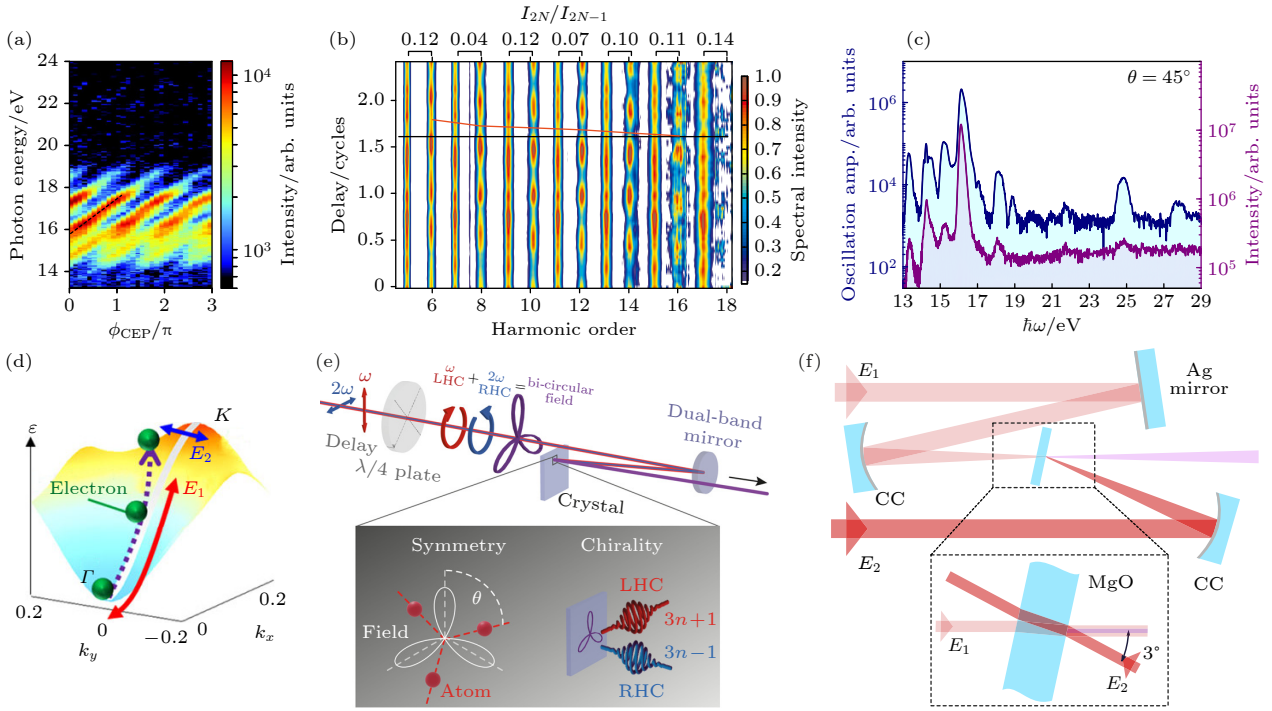


图4 光场控制固体 HHG (a) MgO HH 对 CEP 依赖性^[44]; (b) ZnO HH 谱与双色场相对延迟关系^[65]; (c) 锁定测量 MgO HH 谱(青色)和平均光谱(紫色)^[67]; (d) 双色正交激光场的控制 GaSe 倒空间轨迹示意图^[68]; (e) 双色反向旋圆偏光合成场控制手性 HHG 示意图^[69]; (f) 驻波场增强 MgO HHG 示意图^[70]

Fig. 4. Control of solid HHG by manipulating driving laser field: (a) CEP dependence of HH in MgO^[44]; (b) HH spectra in ZnO versus delay between two-color fields^[65]; (c) normalized oscillating harmonic spectrum of lock measurement (cyan) and normalized average spectrum (purple) of MgO^[67]; (d) schematic diagram of k -space trajectories of electrons in GaSe, driven by perpendicularly polarized two-color field^[68]; (e) schematic diagram of controlling chiral HHG by using synthetic two-color counter-rotating circularly polarized light^[69]; (f) schematic diagram of the enhancement of MgO HHG in the standing wave field^[70].

在调制亚周期 HHG 的同时,垂直双色场被证明可以作为一种先进的弱 HH 信号提取手段. Uzan 等^[67]通过添加一个垂直于基频场偏振的弱二次谐波诱导产生 HH 谱周期性调制,通过添加已知周期时间调制,结合傅里叶分析增强了对淹没在背景噪声中弱 HH 信号的提取,这构成了“锁定测量”,如图 4(c) 所示.通过“锁定测量”技术,更高导带的贡献得以被研究.双色倍频激光以平行或正交方式构成的合成激光场对固体 HHG 的调制得到了充分的研究, Sanari 等^[68]将双色倍频场推广到任意波长合成光场,如图 4(d) 所示.这种合成激光场驱动电子以更复杂的轨迹运动,使特定阶次转换效率增强约 100 倍.

线偏振合成双色场通过调控电子轨迹,打破系统原有的时间或空间反演对称性,而“三叶草”形激光场对固体 HHG 引入了更强对称性约束,形成独特对称性选择定则,产生手性依赖的圆偏振 HH 发射, Heinrich 等^[69]对此现象进行了实验验证,如图 4(e) 所示.此外,单色反向传输激光场形成的介

质内驻波场被证明可以有效增强 HH 强度^[70],如图 4(f) 所示.材料调控和光场调控可以有效操纵固体 HHG,由此产生的多自由度过程控制极大地推动了固体 HHG 在先进光源、精密测量和信息科学领域的应用.

4 固体 HHG 应用

除了作为一种极紫外光源和阿秒脉冲产生手段外,固体 HH 还携带了光与物质相互作用信息,在材料物性和超快动力学表征等领域具有重要应用.固体 HHG 提供了一种全光学亚周期精度电子动力学探针,为材料能带结构的表征和超高时空分辨测量提供了一种全新手段,并成功应用到能带结构重构、贝利曲率测量、准粒子再碰撞动力学观测和价电子皮米量级成像等领域.

4.1 紧凑型先进光源

HHG 是一种极端光学上转换过程,与气体 HHG

相比, 固体 HHG 的调控手段更加丰富, 提供了一种紧凑型多自由度可控的先进光源产生途径. 基于固体 HHG 的先进光源具有以下优势: 1) 固体 HHG 对驱动激光功率的要求比气体低 2 个量级以上, 使得高重频固体 HHG 在实验室易于实现; 2) 通过特殊材料和微纳结构设计^[11,71], 可以极大提高能量转换效率, 同时实现其波长选择和空间聚焦, 推动固体 HH 光源在信息科学和片上集成光学领域的应用; 3) 基于固体带内谐波辐射, 由于 HH 间无啁啾, 无需额外啁啾补偿即可合成阿秒脉冲光源, Garg 等^[72]首次基于 SiO₂ 晶体 HHG, 获得并表征了 470 as 孤立阿秒脉冲, 图 5(a) 为 SiO₂ 产生阿秒脉冲测量条纹谱图, 色标表示光电子数; 4) 固体材料由于高密度和周期性, 在产生椭圆偏振甚至圆偏振 HH 方面更具优势. Saito 等^[73]首次在实验上证实圆偏振基频光可产生圆偏振 HH. Klemke 等^[74]证实一定椭圆率基频光作用下单晶 Si 可产生圆偏振 HH, 其产率高于圆偏振驱动光. 这是气体中完全不具备的优势, 对圆偏振阿秒脉冲的产生具有重要意义.

与气体相比, 固体受限于材料损伤阈值, HH 光子能量难以突破 40 eV. 虽然纳米结构、超表面和掺杂等技术证明能在材料损伤阈值之下增强

HHG, 然而高光子能量信号获得仍面临挑战. 理论工作预测的单原子层材料面外 HHG^[75] 和双层材料层间散射^[76] 为数百电子伏特高光子能量光源获得提供备选方案, 层间排列结构设计和驱动光波长选择为高能极紫外光源提供了新的可控自由度, 如图 5(b) 所示. 相关工作对基于固体 HHG 高光子能量光源的获得提供了指导, 得益于纳米技术的进步有望最终得到应用.

4.2 能带结构重构

物质的光学、电学、热学等性能很大程度上依赖于其能带结构, 角分辨光电子能谱利用光电效应, 将光电子能量和动量对应起来, 是固体能带结构表征的常用手段. 但是角分辨光电子能谱仪需要在超高真空环境下使用, 对周围电磁环境和样品要求苛刻. 固体 HHG 是一个极端的光学上转换过程, 与材料性质以及激光参数密切相关. 基于飞秒强激光和固体相互作用 HHG, 提供了一种全光的亚光学周期的电子探针, 为晶体能带结构和电子行为表征提供了一种全新的手段. 固体 HHG 中, 电子在带内的加速和量子轨道携带了材料能带信息. 通过检索量子轨道时间和能量信息, 有望实现全布里渊区固体能带的高精度重构.

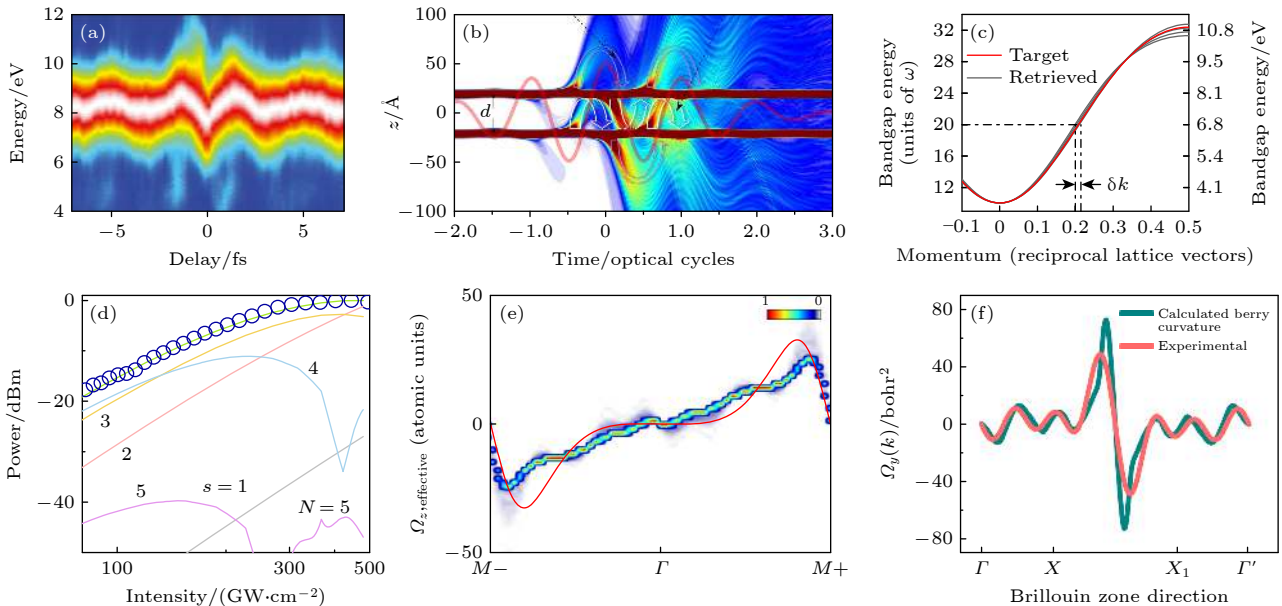


图 5 固体 HHG 应用 (a) SiO₂ 阿秒条纹谱^[72]; (b) 双层 h-BN 的感应电子密度随时间的演化^[76]; (c) ZnO 能带重构^[77]; (d) ZnSe HH 产率随光强的依赖关系^[78]; (e) α -石英贝利曲率重构^[79]; (f) β -WP₂ 贝利曲率重构^[24]

Fig. 5. Applications of solid HHG: (a) Attosecond-streaking spectrogram in SiO₂^[72]; (b) time evolution of induced electronic density for distant bilayer h-BN^[76]; (c) band reconstruction of ZnO^[77]; (d) the power of HHG yield versus driving laser intensity for ZnSe^[78]; (e) retrieved Berry curvature of α -quartz^[79]; (f) retrieved Berry curvature of β -WP₂^[24].

Vampa 等^[77]通过平行双色倍频场调制 ZnO 单晶中 HHG, 由激光引入的对称性破缺导致偶阶谐波发射. 偶阶谐波强度反映了 HHG 子周期对称性破缺程度, 通过扫描双色场相对延时, 不同轨道依次达到最大破缺, 偶阶谐波表现出依赖于谐波阶次及相位的周期调制. 调制相位定位不同量子轨迹, 偶阶谐波阶次作为能量标尺标定相应轨迹能带差值. 通过实验测量并结合理论模拟, ZnO 能带结构得到高精度重构, 如图 5(c) 所示, 其中红线和灰线分别为目标和重构的动量相关的带隙, 动量分辨率 δk 高达 0.02 \AA^{-1} . 由于再碰撞电子-空穴对亚周期动力学特性, 全光学能带结构测量具有超快时间分辨率. 值得注意的是, 由于传播效应和材料对带隙上 HH 光子的重吸收, 导致固体 HH 谱很难直接精确测量. 同时受限于实验光谱测量范围, 基于带间极化 HHG 对材料能带结构的测量难以扩展到整个第一布里渊区. 考虑到材料对带隙能量下光的透明特性, Lanin 等^[78]利用带隙能量下 HH 实现 ZnSe 第一导带能带结构测量. 电子和空穴形成的非谐性电流反映了各自能带的失谐情况. 通过模拟非谐性电流随驱动光场强度依赖, 如图 5(d) 所示, 圆圈表示实验数据, 实线对应能带不同阶傅里叶系数预测依赖关系, 通过对比, 符合实验结果的检验能带被筛选出来, 这种方法不受材料重吸收干扰和苛刻的光谱探测窗口限制, 使全布里渊区能带光学测量成为现实.

4.3 Berry 曲率测量

Berry 相位对材料性质具有显著影响, 涉及物理各个分支, 目前还缺乏简便可靠的实验表征手段, 限制了对 Berry 相位的认识. 在固体 HHG 电子带内加速阶段, Liu 等^[14]发现: 电子运动除了受到电场驱动, 还受到 Berry 相位附加影响 $\dot{r} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon(k)}{\partial k} - \dot{k} \times \Omega(k)$ 产生反常横向电流, 其中 r 是电子波包的位置、 k 是其波矢量、 $\varepsilon(k)$ 和 $\Omega(k)$ 分别表示材料能带结构和 Berry 曲率. 随时间变化反常电子群速度引起振荡电流, 发射 HH 光子, 其偏振垂直于驱动激光偏振. Luu 等^[79]通过严格测量垂直基频光偏振方向的偶阶谐波强度, 对所得横向电流进行拟合, 全光学重构 α -石英的 Berry 曲率, 如图 5(e) 所示, 测量结果 (彩色) 与计算结果 (红线) 具有相似趋势. 此后, 作为一种新型光学

表征手段, Berry 曲率的 HH 光谱法表征被推广到了更多新材料体系. Lv 等^[22]成功在 β -WP₂ 中重构了振荡的贝利曲率结构, 如图 5(f) 所示, 测量结果 (红线) 与计算结果 (蓝线) 高度符合. 进一步证明 HHG 提取量子拓扑材料 Berry 曲率的可靠性.

4.4 准粒子再碰撞观测

固体 HHG 及其边带产生为在亚飞秒时间尺度测量准粒子碰撞动力学提供了理想平台, Langer 等^[80]利用双色场驱动固体 HHG, 研究了亚周期准粒子碰撞. 研究者通过近红外泵浦脉冲在太赫兹探测脉冲不同相位处相干制备出电子-空穴对, 不同时刻制备的准粒子经历的动力学过程迥然不同. 通过扫描泵浦-探测光相对相位, 实现光场驱动准粒子加速分离或再碰撞的周期性切换, 准粒子碰撞信息最终通过碰撞湮灭释放的边带光子被记录, 如图 6 所示. 通过控制准粒子生成时间, 电子-空穴对被单调的拉开或回碰. 这类类似于回旋加速器中的电子, 只有当电子被注入到交变加速器场的正确相位时, 它们才能有效地加速. 通过高阶边带抽运探测强度扫描, 包括激子结合能、散射时间和碰撞截面的库仑增强等材料多维信息可以被检索. 太赫兹光场驱动的实时碰撞将成为研究现代材料科学众多应用中的包括激子、双激子、三激子、石墨烯和拓扑绝缘体中的类狄拉克费米子, 或具有强电子-声子耦合材料中的极化子等复杂准粒子的重要工具.

4.5 价电子高精度成像

固体 HHG 可以对准粒子碰撞动力学进行超高速时间分辨测量, 也可以用于高精度价电子空间成像. Lakhota 等^[33]将中心波长 620 nm、脉宽 5.5 fs 的强激光聚焦到 MgF₂ 和 CaF₂ 等材料驱动 HHG. 与晶体中束缚价电子库仑场强度相比拟的激光场驱动下, 晶体中电子以准自由电子形式运动. 在晶体势被显著抑制的光场范围内, 能带色散呈准抛物线形. 如图 7(a) 所示, 无场时晶体电势用黑色曲线表示, 当光场强度 $F_L = 0.95 \text{ V/\AA}$ 时 (橙色) 晶体内部等效周期势被抹平, 此时晶体内部电子行为近似自由电子, 右侧为 MgF₂ 结构示意图, 绿色阴影区域表示价电子云, 电子波函数的动力学和伴随的 HHG 在散射的框架内处理. HHG 产率与晶体内部周期势通过公式 $I_N(F_0, \omega_L, e_i) \propto$

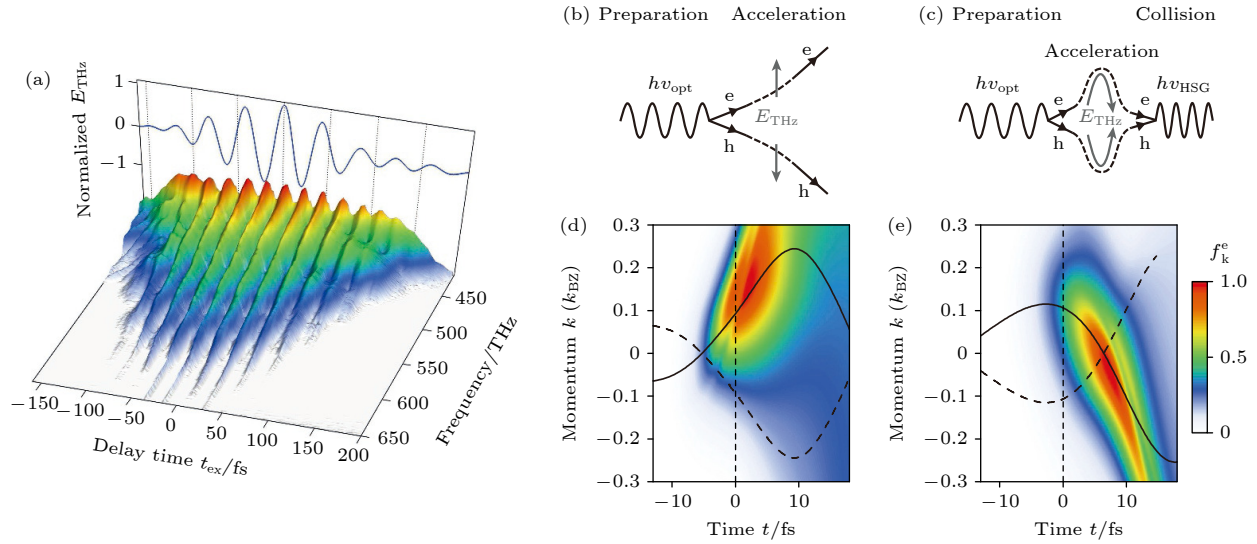


图 6 光波驱动 WSe₂ 准粒子碰撞^[80] (a) 高阶边带强度 I_{HSG} 随太赫兹驱动场和带间激发脉冲之间延迟时间 t_{ex} 的依赖关系; 太赫兹场驱动准粒子碰撞示意图, 对应电子-空穴 (b) 远离和 (c) 碰撞湮灭, 发射出边带光子 $h\nu_{\text{HSG}}$; 不同动量 k 和时间延迟 t_{ex} 的电子分布, 对应电子-空穴 (d) 远离和 (e) 碰撞

Fig. 6. Lightwave driven quasi-particle recollision in WSe₂^[80]: (a) Intensity of high order sideband I_{HSG} as a function of the time delay between the THz driving fields and the interband excitation pulse; schematic diagram of the quasi-particle recollision driven by THz field, corresponding to electron-hole (b) apart and (c) recombine, annihilate and emit a sideband photon $h\nu_{\text{HSG}}$; electron distribution as a function of momentum k and time delay t_{ex} , corresponding to electron-hole (d) separation (d) and (e) recollision.

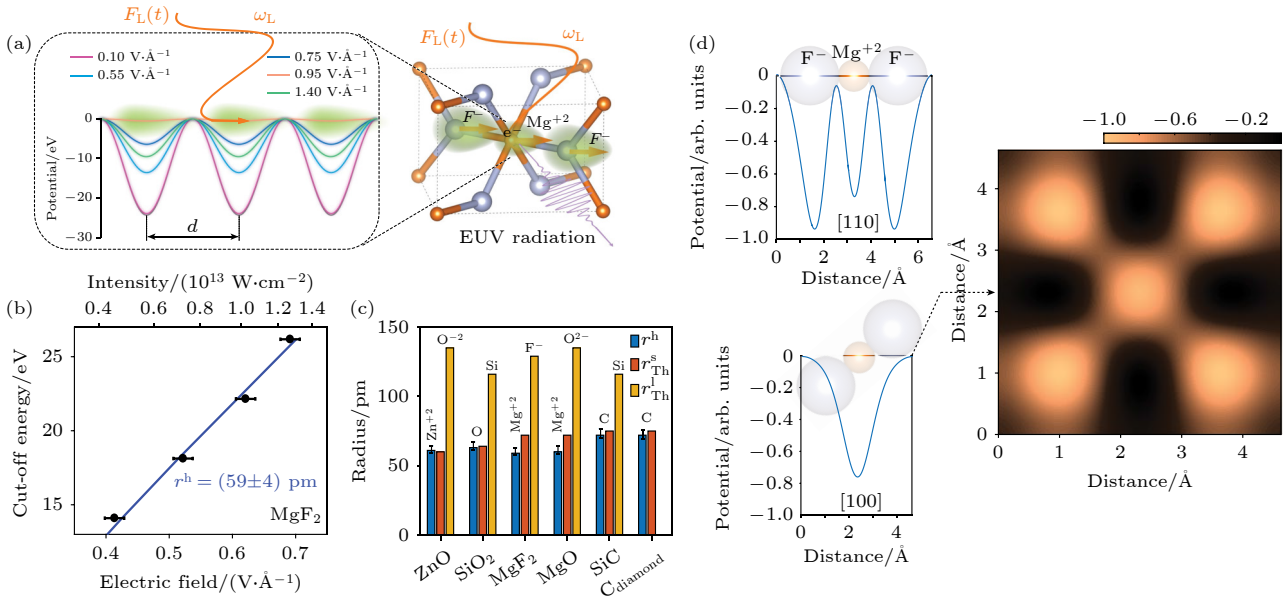


图 7 MgF₂ 价电子显微成像^[33] (a) 强激光场下有效晶势; (b) Mg²⁺ 半径测量; (c) 几种材料中最小离子/原子半径; (d) 价电子势和电子密度的重构

Fig. 7. Microscopic imaging of valence charge density in MgF₂^[33]: (a) The effective crystal potential along the^[99] crystal orientation under the intense laser field; (b) radius measurement of Mg²⁺; (c) minimum ion/atom radius in several materials; (d) reconstruction of charge potential and valence charge density.

$\left| N_e \sum_{k_l} V_{k_l} k_l J_N \left(k_l \frac{F_0}{\omega_L^2} \right) \right|^2$ 联系, 其中 k_l 和 V_{k_l} 分别为倒空间向量和晶格势的傅里叶分量在激光偏振方向上的投影. 同时在散射近似下, 晶体中最小原子或离子半径的大小与截止能量直接相关

$r^h \approx \frac{2\pi F_0}{E_c \omega_L}$, 其中 E_c 为 HH 截止能量、 F_0 为截止对应光场强度, 这意味着可以通过测量截止能量来探测原子半径大小. 如图 7(b) 所示, 根据 HH 光谱截止能量 E_c 与驱动光振幅 F_0 的关系, 由斜率计算得

到 Mg^{2+} 离子半径 $r^h = (59 \pm 4)$ pm. 通过对比重构的离子/原子半径与经验值, 如图 7(c) 所示, 散射图像的有效性得到验证. 进一步地, 实空间势函数由不同晶向 HHG 产率随光强依赖关系通过反傅里叶变换描绘出来, 如图 7(d) 所示, 色谱图为价电子势的二维重构图, 插图为激光偏振与不同晶向对齐时重构的一维势场切片, 空间分辨率高达 26 pm. 基于固体 HHG 皮米分辨价电子成像为研究微观世界提供强有力工具, 未来其与时间分辨光谱学的结合可能为在飞秒-皮米尺度研究微观粒子动力学提供支撑.

4.6 时间分辨动力学测量

固体 HHG 涉及电子在单能带或多能带运动, 提供了亚周期分辨的电子动力学探针. 同时 HHG 对电子相干性的要求极高, 电子散射引起的退相干效应对其影响显著, 并直接映射在 HHG 产率等可探测量上. 相比于高精度阿秒脉冲泵浦探测技术^[81,82], 固体 HH 谱学对激光脉冲要求大大降低. 即使实验

室常用的百飞秒激光脉冲, 借助固体 HH 谱学手段也可以实现阿秒时间分辨的电子动力学探测.

Bionta 等^[83] 首次将 HHG 用于 Mott 绝缘体金属-绝缘体相变动力学探测, 实验光路图如图 8(a) 所示, 中心波长 1.5 μm 、脉宽 50 fs 的中红外激光作为泵浦光激发 VO_2 纳米薄膜产生光致金属-绝缘体相变, 波长 7—10 μm 、脉宽 80 fs 激光作为探测光, 在其传输方向进行光谱测量. 通过记录 HH 光谱强度随两束光相对延时依赖关系, 光致相变动力学过程以光谱方式被可视化呈现, 图 8(b) 所示为不同泵浦光强度下的五阶和三阶谐波产率随延时的依赖关系. 泵浦光激发后, HH 信号快速衰减, 衰减幅度随泵浦光强度单调增加. 随后, 其产率在皮秒时间尺度以双指数时间特征得到恢复, 其中快和慢过程对应时间分别为 300 fs 和 1.5 ps. 有趣的是, 恢复过程中相干振荡被 HHG 产率调制所记录. 预示着时间分辨 HH 光谱测量在相干声子动力学表征方面的潜力. 将 HHG 时间分辨光谱与相变动力学结合的尝试, 为研究材料在不同的条件下, 如

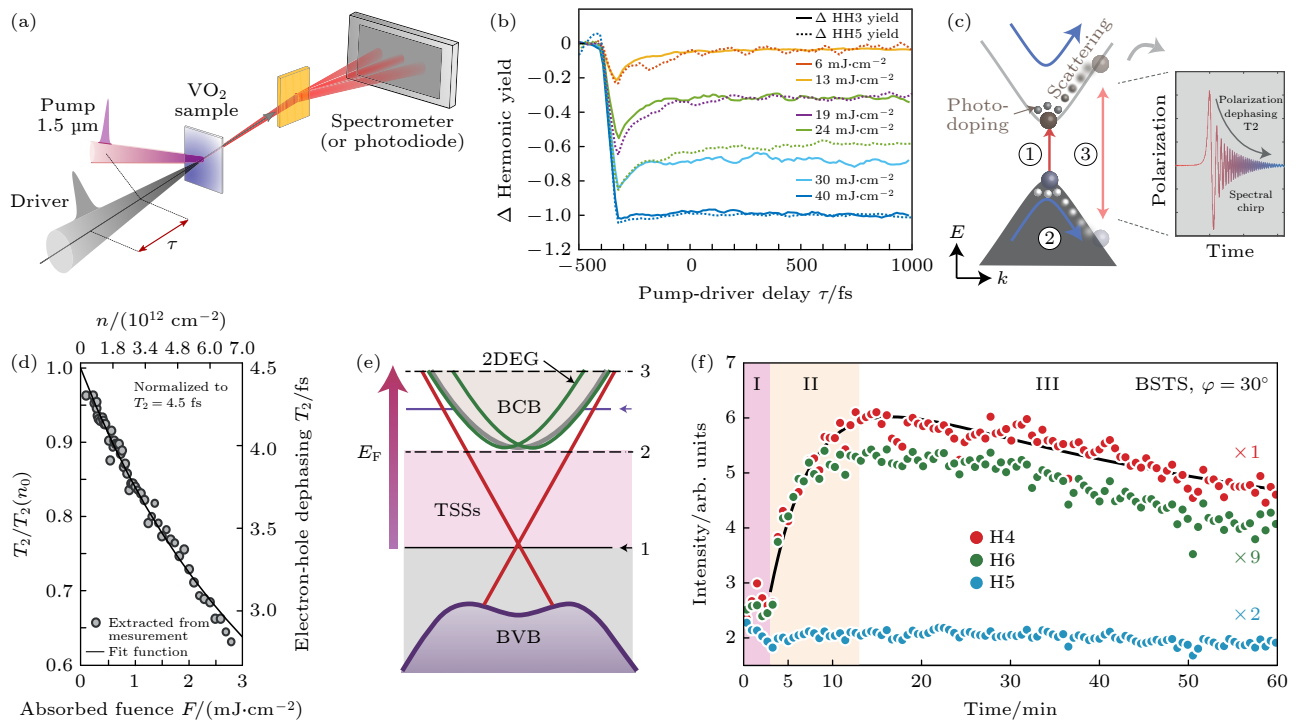


图 8 HHG 检测 VO_2 相变^[83] (a) 实验光路示意图; (b) HHG 产率随泵浦光强度和延时关系. MoS_2 电子-空穴相干性检验^[84] (c) 带隙附近的电子-空穴动力学示意图; (d) 退相干时间拟合结果. 拓扑表面态 HHG^[17] (e) 拓扑绝缘体能带示意图; (f) HHG 产率对材料解离时间依赖关系

Fig. 8. Detection of VO_2 phase transition^[83]: (a) Schematic diagram of experimental setup; (b) relationship of harmonic yield with pump laser intensity and delay. Test on coherence of electron-hole pair in MoS_2 ^[84]: (c) Schematic diagram of electron-hole dynamics near bandgap; (d) fitted value for the dephasing time. (e) (f) HHG from topological surface^[17]: (e) Schematic diagram of topological insulator band; (f) the HH yield versus the cleavage time of the sample.

高压、高温和光激发下如何演化和转变为奇异相提供了全新手段。

除了时间分辨相变动力学观测, HH 光谱也被用来表征超快电子散射. HHG 作为一个高度非线性相干过程, 其产率与电子干涉情况密切相关. 电子散射加速电子退相干效应, HHG 产率受到抑制. 同时, 散射强度与电子轨迹直接联系, 并通过退相干映射到测量光谱, 形成了以 HH 光谱为媒介的电子散射间接测量. Heide 等^[84]通过泵浦光在单层 MoS₂ 导带预注入电子, 随后通过中红外激光驱动 HHG. 预注入电子对后续电子产生强烈散射, 由此导致的退相干效应极大削弱 HH 强度, 如图 8(c) 所示. 其抑制程度随预注入电子数的增多单调变强, 同时高阶 HH 因为更长的量子轨迹受到更剧烈抑制, 理论扫描唯象的退相干时间, 重现了实验结果. 最后通过拟合外推, 得到单层 MoS₂ 中 HHG 退相干时间约为 4.5 fs, 如图 8(d) 所示. 这项工作证明了多体效应在固体 HHG 中的重要性, 为没有超短激光脉冲的情况下确定固体中的退相干时间提供了可能.

除对常规材料中电子动力学进行表征外, 固体 HHG 也成为研究拓扑材料电子动力学的重要载体, 图 8(e) 为拓扑表面态 (红线), 体带 (深紫色, 灰色线和阴影区域) 和费米面的演化示意图. Bai 等^[17]利用 HHG 对介质对称性的敏感依赖, 将 BiSbTeSe₂ 拓扑表面态与体态 HHG 通过奇偶阶此的方式加以区分. 偶阶 HH 角度依赖满足拓扑表面态 C_{3v} 对称性, 构成识别拓扑表面态 HHG 的重要证据. 偶阶 HH 平行分量来自于拓扑表面态自旋流形成的平行自旋电流, 垂直分量来自于贝利曲率引起的反常带内电流, 这形成了拓扑表面态 HHG 的特征指纹. 如图 8(f) 所示, 通过测量不同解离时间的偶阶信号产率, 可以刻画表面二维电子气的演化动力学. 固体 HHG 为研究非微扰自旋和电荷动力学共存的三维拓扑绝缘体中拓扑表面态和体态之间的相互作用提供了一个有效的工具, 将推动光波驱动电子学和自旋电子学的发展.

5 展 望

自 2011 年 ZnO 非微扰 HHG 报道以来, 固体 HHG 迅速成为强场物理和阿秒科学的研究前沿. 得益于固体材料的高原子密度, 固体 HHG 作为一

种高效光学频率上转换过程, 产生宽谱超快光源. 固体 HH 光谱范围覆盖了太赫兹到极紫外波段, 尤其对宽带隙介质 (如 MgO 和石英晶体), 在 10—20 eV 范围内可以形成较宽的极紫外平台区, 为基于固体 HHG 的阿秒脉冲产生提供了可能. 且固体 HH 光源具有多自由度控制的优势, 在实现紧凑化和模块化的同时, 也为多功能定制波长可调谐光源提供了便利. 应当指出的是, 受到固体材料相对低的损伤阈值的限制, 基于固体 HHG 来制备更高光子能量和更强单脉冲能量的紧凑光源仍面临挑战. 为了克服材料损伤的不利影响, 大带隙材料和超短脉冲等能极大提高材料损伤阈值. 此外, 微纳结构、超表面和掺杂等技术的应用也有望在材料损伤阈值之下增强 HHG 产率、扩展其光谱覆盖范围. 同时也为固体 HHG 控制提供了自由度, 使得利用表面修饰和能带工程等技术实现对 HH 特定波段选择、特殊空间分布设计 (如聚焦和散焦)、特定椭圆率和角动量获取等成为可能, 为推进 HH 光源片上集成提供技术支撑.

此外, 作为一种灵敏的光谱学手段, HH 光谱将为材料物性表征和信息科学提供新的手段与平台. HH 光谱在表征材料能带、贝利曲率、价电子结构和超快相变等领域的更大潜力等待研究者们进一步发掘. 同时, 与 HH 偏振和时域特性为自由度的信息科学将蓬勃发展, 并有望超越偏振和时域的二进制, 为多自由度可编程器件提供可能.

最后, 应当强调, 固体 HHG 研究远没有完备, 诸如 HHG 机制等许多开放性问题需要实验和理论工作进一步探索. 目前, 固体 HHG 理论研究主要基于单电子近似含时薛定谔方程、半导体布洛赫方程与含时密度泛函理论. 单电子近似含时薛定谔方程采用静止离子实的周期性势场描述相互作用, 而半导体布洛赫方程采用的能带没有考虑光场作用, 即能带是锁定的, 两者都是处理无相互作用电子波包的绝热演化. 多体相互作用被简单概括进唯象的退相干时间中, 多体作用对固体 HHG 的影响细节并不清晰. 更准确地描述固体 HHG 需要考虑电子的多体相互作用和固体 HHG 过程中的非绝热效应. 受限于计算资源, 对固体 HHG 进行从头算的量子处理尚无法普及和推广, 发展简明有效的包含多体相互作用的理论描述图像对推动固体 HHG 更深入理解至关重要.

国内固体 HHG 研究虽然起步较国外晚, 但是

发展非常迅速, 近几年取得了一批优秀成果 [17,22, 29,30,35,49,76,85–106]。目前这些成果主要还是集中在理论模拟, 实验方面正迎头赶上 [17,22,49,85,86]。由于固体 HHG 涉及多学科交叉, 精确的信息提取依赖于准确的理论模拟, 希望国内实验和理论研究者紧密合作, 通过精确的实验测量, 结合高精度的理论计算, 在固体 HHG 物理和应用方面做出更大贡献。

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Corkum P á, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [5] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [6] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V S, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A M, Kling M F 2010 *Nature* **466** 739
- [7] Gy, Farkas, Cs, Tóth, S, D, Moustazis, N, A, Papadogiannis 1992 *Phys. Rev. A* **46** R3605
- [8] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2010 *Nat. Phys.* **7** 138
- [9] You Y S, Reis D A, Ghimire S 2017 *Nat. Phys.* **13** 345
- [10] You Y S, Yin Y, Wu Y, Chew A, Ren X, Zhuang F, Gholam Mirzaei S, Chini M, Chang Z, Ghimire S 2017 *Nat. Commun.* **8** 1
- [11] Han S, Kim H, Kim Y W, Kim Y J, Kim S, Park I Y, Kim S W 2016 *Nat. Commun.* **7** 1
- [12] Liu H, Guo C, Vampa G, Zhang J L, Sarmiento T, Xiao M, Bucksbaum P H, Vučković J, Fan S, Reis D A 2018 *Nat. Phys.* **14** 1006
- [13] Sivilis M, Taucer M, Vampa G, Johnston K, Staudte A, Naumov A Y, Villeneuve D M, Ropers C, Corkum P B 2017 *Science* **357** 303
- [14] Liu H, Li Y, You Y S, Ghimire S, Heinz T F, Reis D A 2017 *Nat. Phys.* **13** 262
- [15] Yoshikawa N, Nagai K, Uchida K, Takaguchi Y, Sasaki S, Miyata Y, Tanaka K 2019 *Nat. Commun.* **10** 3709
- [16] Kobayashi Y, Heide C, Keldarsh H K, Johnson A, Liu F, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2021 *Ultrafast Science* **2021**
- [17] Bai Y, Fei F, Wang S, Li N, Li X, Song F, Li R, Xu Z, Liu P 2021 *Nat. Phys.* **17** 311
- [18] Schmid C P, Weigl L, Grössing P, Junk V, Gorini C, Schlauderer S, Ito S, Meierhofer M, Hofmann N, Afanasiev D 2021 *Nature* **593** 385
- [19] Yoshikawa N, Tamaya T, Tanaka K 2017 *Science* **356** 736
- [20] Hafez H A, Kovalev S, Deinert J C, Mics Z, Green B, Awari N, Chen M, Germanskiy S, Lehnert U, Teichert J 2018 *Nature* **561** 507
- [21] Cheng B, Kanda N, Ikeda T N, Matsuda T, Xia P, Schumann T, Stemmer S, Itatani J, Armitage N P, Matsunaga R 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 117402
- [22] Lv Y Y, Xu J, Han S, Zhang C, Han Y, Zhou J, Yao S H, Liu X P, Lu M H, Weng H 2021 *Nat. Commun.* **12** 6437
- [23] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Klug D D, Corkum P B, Brabec T 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 073901
- [24] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Corkum P B, Brabec T 2015 *Phys. Rev. B* **91** 064302
- [25] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Ndabashimiye G, Szafruga U B, Mohammad A, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2012 *Phys. Rev. A* **85** 043836
- [26] Ikemachi T, Shinohara Y, Sato T, Yumoto J, Kuwata Gonokami M, Ishikawa K L 2017 *Phys. Rev. A* **95** 043416
- [27] You Y S, Cunningham E, Reis D A, Ghimire S 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 114002
- [28] Osika E N, Chacón A, Ortmann L, Suárez N, Pérez Hernández J A, Szafran B, Ciappina M F, Sols F, Landsman A S, Lewenstein M 2017 *Phys. Rev. X* **7** 021017
- [29] Li L, Lan P, Zhu X, Huang T, Zhang Q, Lein M, Lu P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 193901
- [30] Zhang X, Li J, Zhou Z, Yue S, Du H, Fu L, Luo H G 2019 *Phys. Rev. B* **99** 014304
- [31] Yue L, Gaarde M B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 153204
- [32] Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M, Browne D A, Schafer K J, Gaarde M B, Reis D A 2016 *Nature* **534** 520
- [33] Lakhotia H, Kim H Y, Zhan M, Hu S, Meng S, Goulielmakis E 2020 *Nature* **583** 55
- [34] Catoire F, Bachau H, Wang Z, Blaga C, Agostini P, DiMauro L F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 143902
- [35] Li L, Lan P, Zhu X, Lu P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 223201
- [36] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982
- [37] Goulielmakis E, Brabec T 2022 *Nat. Photon.* **16** 411
- [38] Park J, Subramani A, Kim S, Ciappina M F 2022 *Adv. Phys. X* **7** 2003244
- [39] Kruchinin S Y, Krausz F, Yakovlev V S 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 021002
- [40] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A 2012 *Science* **336** 1287
- [41] Ye P, He X, Teng H, Zhan M, Zhong S, Zhang W, Wang L, Wei Z 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 073601
- [42] Gallais L, Douti D B, Commandre M, Batavičiūtė G, Pupka E, Ščiuka M, Smalakys L, Sirutkaitis V, Melninkaitis A 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 223103
- [43] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [44] You Y S, Wu M, Yin Y, Chew A, Ren X, Gholam Mirzaei S, Browne D A, Chini M, Chang Z, Schafer K J 2017 *Opt. Lett.* **42** 1816
- [45] Langer F, Hohenleutner M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2017 *Nat. Photon.* **11** 227
- [46] Korobenko A, Saha S, Godfrey A T K, Gertsvolf M, Naumov A Y, Villeneuve D M, Boltasseva A, Shalaev V M, Corkum P B 2021 *Nat. Commun.* **12** 4981
- [47] Pashkin Y A, Yamamoto T, Astafiev O, Nakamura Y, Averin D V, Tsai J S 2003 *Nature* **421** 823
- [48] Baykusheva D, Chacón A, Lu J, Bailey T P, Sobota J A, Soifer H, Kirchmann P S, Rotundu C, Uher C, Heinz T F 2021 *Nano Lett.* **21** 8970
- [49] Lou Z, Zheng Y, Liu C, Zhang L, Ge X, Li Y, Wang J, Zeng Z, Li R, Xu Z 2020 *Opt. Commun.* **469** 125769
- [50] You Y S, Yin Y, Wu Y, Chew A, Ren X, Zhuang F, Gholam Mirzaei S, Chini M, Chang Z, Ghimire S 2017 *Nat. Commun.* **8** 724
- [51] Jürgens P, Liewehr B, Kruse B, Peltz C, Engel D, Husakou A, Witting T, Ivanov M, Vrakking M J J, Fennel T 2020 *Nat. Phys.* **16** 1035
- [52] DiChiara A D, Sistrunk E, Miller T A, Agostini P, DiMauro

- L F 2009 *Opt. Express* **17** 20959
- [53] Flettner A, Pfeifer T, Walter D, Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2003 *Appl. Phys. B* **77** 747
- [54] Svoboda V, Yin Z, Luu T T, Wörner H J 2021 *Opt. Express* **29** 30799
- [55] Luu T T, Yin Z, Jain A, Gaumnitz T, Pertot Y, Ma J, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3723
- [56] Liu J Q, Bian X B 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 213901
- [57] Saule T, Heinrich S, Schötz J, Lilienfein N, Högner M, deVries O, Plötner M, Weitenberg J, Esser D, Schulte J 2019 *Nat. Commun.* **10** 458
- [58] Hädrich S, Krebs M, Hoffmann A, Klenke A, Rothhardt J, Limpert J, Tümmernann A 2015 *Light Sci. Appl.* **4** e320
- [59] Carstens H, Högner M, Saule T, Holzberger S, Lilienfein N, Guggenmos A, Jocher C, Eidam T, Esser D, Tosa V 2016 *Optica* **3** 366
- [60] Vampa G, Ghamsari B G, Siadat Mousavi S, Hammond T J, Olivieri A, Lisicka Skrek E, Naumov A Y, Villeneuve D M, Staudte A, Berini P 2017 *Nat. Phys.* **13** 659
- [61] Yang Y, Lu J, Manjavacas A, Luk T S, Liu H, Kelley K, Maria J P, Runnerstrom E L, Sinclair M B, Ghimire S 2019 *Nat. Phys.* **15** 1022
- [62] Huang T, Zhu X, Li L, Liu X, Lan P, Lu P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 043425
- [63] Higuchi T, Stockman M I, Hommelhoff P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 213901
- [64] Garg M, Kim H Y, Goulielmakis E 2018 *Nat. Photon.* **12** 291
- [65] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, Schmidt B E, Légaré F, McDonald C R, Brabec T, Corkum P B 2015 *Nature* **522** 462
- [66] Vampa G, Lu J, You Y S, Baykusheva D R, Wu M, Liu H, Schafer K J, Gaarde M B, Reis D A, Ghimire S 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 144003
- [67] Uzan A J, Orenstein G, Jiménez Galán Á, McDonald C, Silva R E F, Bruner B D, Klimkin N D, Blanchet V, Arusi Parpar T, Krüger M 2020 *Nat. Photon.* **14** 183
- [68] Sanari Y, Otobe T, Kanemitsu Y, Hirori H 2020 *Nat. Commun.* **11** 1
- [69] Heinrich T, Taucer M, Kfir O, Corkum P B, Staudte A, Ropers C, Sivilis M 2021 *Nat. Commun.* **12** 3723
- [70] Korobenko A, Hammond T J, Zhang C, Naumov A Y, Villeneuve D M, Corkum P B 2019 *Opt. Express* **27** 32630
- [71] Imasaka K, Kaji T, Shimura T, Ashihara S 2018 *Opt. Express* **26** 21364
- [72] Garg M, Zhan M, Luu T T, Lakhota H, Klostermann T, Guggenmos A, Goulielmakis E 2016 *Nature* **538** 359
- [73] Saito N, Xia P, Lu F, Kanai T, Ishii N 2017 *Optica* **4** 1333
- [74] Klemke N, Tancogne Dejean N, Rossi G M, Yang Y, Scheiba F, Mainz R E, Di Sciacca G, Rubio A, Kärtner F X, Mücke O D 2019 *Nat. Commun.* **10** 1319
- [75] Tancogne Dejean N, Rubio A 2018 *Sci. Adv.* **4** eaao5207
- [76] Yu C, Jiang S, Wu T, Yuan G, Peng Y, Jin C, Lu R 2020 *Phys. Rev. B* **102** 241407
- [77] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, Schmidt B E, Légaré F, McDonald C R, Brabec T, Klug D D, Corkum P B 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193603
- [78] Lanin A A, Stepanov E A, Fedotov A B, Zheltikov A M 2017 *Optica* **4** 516
- [79] Luu T T, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [80] Langer F, Hohenleutner M, Schmid C P, Pöllmann C, Nagler P, Korn T, Schüller C, Sherwin M S, Huttner U, Steiner J T 2016 *Nature* **533** 225
- [81] Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, Herrmann J, Volkov M, Kasmi L, Shinohara Y, Yabana K, Gallmann L, Keller U 2016 *Science* **353** 916
- [82] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C D, Sato S A, Whitmore D, Gandman A, Prell J S, Borja L J, Prendergast D, Yabana K 2014 *Science* **346** 1348
- [83] Bionta M R, Haddad E, Leblanc A, Gruson V, Lassonde P, Ibrahim H, Chaillou J, Émond N, Otto M R, Jiménez Galán Á 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 023250
- [84] Heide C, Kobayashi Y, Johnson A, Liu F, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2022 *Optica* **9** 512
- [85] Li L, Zhang Y, Lan P, Huang T, Zhu X, Zhai C, Yang K, He L, Zhang Q, Cao W 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 187401
- [86] Li L, Huang T, Lan P, Li J, Zhang Y, Zhu X, He L, Cao W, Lu P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 027401
- [87] Li L, Lan P, He L, Cao W, Zhang Q, Lu P 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 157403
- [88] Jiang S, Chen J, Wei H, Yu C, Lu R, Lin C D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 253201
- [89] Shao C, Lu H, Zhang X, Yu C, Tohyama T, Lu R 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 047401
- [90] Qian C, Yu C, Jiang S, Zhang T, Gao J, Shi S, Pi H, Weng H, Lu R 2022 *Phys. Rev. X* **12** 021030
- [91] Guan M X, Lian C, Hu S Q, Liu H, Zhang S J, Zhang J, Meng S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 184306
- [92] Du T Y, Tang D, Huang X H, Bian X B 2018 *Phys. Rev. A* **97** 043413
- [93] Song X, Zuo R, Yang S, Li P, Meier T, Yang W 2019 *Opt. Express* **27** 2225
- [94] Zuo R, Trautmann A, Wang G, Hannes W R, Yang S, Song X, Meier T, Ciappina M, Duc H T, Yang W 2021 *Ultrafast Sci.* **2021**
- [95] Li J, Fu S, Wang H, Xiao Z, Du H 2018 *Phys. Rev. A* **98** 43409
- [96] Feng Y, Shi S, Li J, Ren Y, Zhang X, Chen J, Du H 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043525
- [97] Zhao Y T, Jiang S C, Zhao X, Chen J G, Yang Y J 2020 *Opt. Lett.* **45** 2874
- [98] He Y L, Guo J, Gao F Y, Yang Z J, Zhang S Q, Liu X S 2021 *Phys. Rev. A* **104** 013104
- [99] Jin J Z, Liang H, Xiao X R, Wang M X, Chen S G, Wu X Y, Gong Q, Peng L Y 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 16LT01
- [100] Jin J Z, Liang H, Xiao X R, Wang M X, Chen S G, Wu X Y, Gong Q, Peng L Y 2019 *Phys. Rev. A* **100** 013412
- [101] Kong X S, Liang H, Wu X Y, Peng L Y 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 124004
- [102] Wu X Y, Liang H, Kong X S, Gong Q, Peng L Y 2022 *Phys. Rev. E* **105** 055306
- [103] Chen Z Y, Qin R 2020 *J. Mater. Chem. C* **8** 12085
- [104] Wang Z, Jiang S, Yuan G, Wu T, Li C, Qian C, Jin C, Yu C, Hua W, Lu R 2019 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **63** 257311
- [105] Jiang S, Yu C, Chen J, Huang Y, Lu R, Lin C D 2020 *Phys. Rev. B* **102** 155201
- [106] Yao H D, Cui B, Ma S Q, Yu C, Lu R F 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 134207 (in Chinese) [姚惠东, 崔波, 马思琦, 余超, 陆瑞锋 2021 物理学报 **70** 134207]

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Generation, manipulation, and application of high-order harmonics in solids*

Wang Yang Liu Yu Wu Cheng-Yin[†]*(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)*

(Received 4 July 2022; revised manuscript received 5 August 2022)

Abstract

The generation of high-order harmonics based on the interaction between ultrafast intense laser and matter provides a platform for studying the light-matter interaction in the non-perturbative region. It is also the main route to generating desktop extreme ultraviolet light source and attosecond pulse. The non-perturbative solid high-order harmonic involves the core content of ultrafast strong field physics, condensed matter physics, materials science, information science and other fields. Since it was first experimentally observed in 2011, it has rapidly become the research frontier of strong field physics and attosecond science. This review summarizes the research progress and important applications of solid high-order harmonics from the perspective of an experimentalist. Firstly, distinct characteristics are shown for solid high-order harmonic by comparing the dependence of harmonic yield and cut-off energy on driving laser parameters with gas high-order harmonic. Then, the progress of manipulation and application are highlighted for solid high-order harmonic, including the precise control of harmonic yield, polarization, space-time distribution through the design of target structure or laser field, as well as the application of solid high-order harmonic spectroscopy in the fields of material structure characterization and ultrafast electron dynamics. Finally, the future is prospected for the study of solid high-order harmonics.

Keywords: ultrafast laser, strong field physics, high-order harmonic generation**PACS:** 42.65.Ky, 42.65.-k, 42.62.Fi**DOI:** [10.7498/aps.71.20221319](https://doi.org/10.7498/aps.71.20221319)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFA0306302) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174011, 11625414).

[†] Corresponding author. E-mail: cywu@pku.edu.cn



固体高次谐波产生、调控及应用

汪洋 刘煜 吴成印

Generation, manipulation, and application of high-order harmonics in solids

Wang Yang Liu Yu Wu Cheng-Yin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 234205 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221319

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221319>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

基于空谱干涉和频域分割的超快激光时空耦合特性的单次测量方法

Single-frame measurement of complete spatiotemporal field of ultrashort laser pulses using frequency domain separate spectral interferometry

物理学报. 2022, 71(3): 034203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211665>

基于二维材料异质结可饱和吸收体的超快激光器

Ultrafast pulse lasers based on two-dimensional nanomaterial heterostructures as saturable absorber

物理学报. 2020, 69(18): 188102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201235>

时空耦合畸变对超快超强激光参数测试及性能评估的影响

Influence of spatiotemporal coupling distortion on evaluation of pulse-duration-characterization and focused intensity of ultra-fast and ultra-intensity laser

物理学报. 2022, 71(17): 174204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220563>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

专题: 阿秒物理

强激光场驱动 Ar 原子电离中的隧穿延时*

赵猛¹⁾²⁾ 全威^{1)2)†} 肖智磊³⁾ 许松坡¹⁾ 王志强¹⁾ 王明辉¹⁾²⁾
成思进¹⁾²⁾ 吴文卓¹⁾²⁾ 王艳兰¹⁾²⁾ 赖炫扬¹⁾²⁾ 柳晓军^{1)2)‡}

1) (中国科学院精密测量科学与技术创新研究院, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (湖北大学物理系, 武汉 430062)

(2022 年 6 月 30 日收到; 2022 年 7 月 27 日收到修改稿)

阿秒钟实验方案是当前研究原子分子体系的价电子在强激光场中隧穿延时问题的有效手段. 基于阿秒钟方案, 本文实验研究了 Ar 原子在 800 nm 椭圆偏振激光场中的光电子动量分布随激光光强的演化规律. 理论上采用包含库仑场效应、非绝热效应、Stark 效应、多电子屏蔽和极化效应的半经典模型对 Ar 原子的强场电离动力学进行了模拟. 通过对比实验测量和数值模拟结果发现, 在本文所研究的光强范围内, Ar 原子的价电子在 800 nm 椭圆偏振激光场中隧穿延时时限为 10 as. 进一步分析表明, 阿秒钟方案中, 考虑多电子屏蔽效应对得到的隧穿延时影响最小, 而考虑非绝热效应的影响最大.

关键词: 阿秒钟, 隧穿延时, 超快电离

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.71.20221295

1 引言

动能小于势垒的粒子以量子隧穿的方式从势垒中通过是否需要有限时间(隧穿延时问题)? 尽管该问题已经被争论了 90 年^[1], 但它仍然是当前的研究热点. 随着超快强激光和谱仪技术的发展, 研究者可以在实验室中, 以超快的时间分辨能力, 研究电子在激光场和库仑场联合势垒中的超快隧穿过程. 最近十几年的进展催生了一系列新的实验技术和方案, 如阿秒条纹相机^[2]、高次谐波结合泵浦探测^[3]、阿秒瞬态吸收^[4]和阿秒钟^[5-8]等.

近年来, 阿秒钟实验方案受到了广泛关注^[9,10], 采用该方案仅使用飞秒激光脉冲即可实现阿秒量级的时间分辨. 阿秒钟的基本工作原理为, 在近圆

偏振激光电场的偏振平面上, 特定激光周期内不同时刻隧穿的光电子会出射到不同的方向, 因此, 光电子的末态动量角度投影可反映其隧穿时刻. 对于 800 nm 近圆偏振激光场而言, 光电子动量分布中出射角度偏转 1° 对应时间变化为 7.4 as.

基于阿秒钟实验方案, 研究者从实验和理论两个方面对隧穿延时问题开展了大量研究, 然而研究结论却不一致. Eckle 等^[5]使用阿秒钟方案研究了 He 原子的隧穿延时, 发现在实验误差允许范围内, He 原子价电子在强激光场中的隧穿过程是瞬时发生的. Torlina 等^[11]数值模拟了 H 原子在椭圆偏振激光场中的电离过程, 计算结果再次表明 H 原子价电子的隧穿过程不需要时间. Sainadh 等^[9]制备出 H 原子样品, 并基于阿秒钟方案开展实验研究, 结合数值求解三维含时薛定谔方程的结果,

* 国家重点研发计划(批准号: 2019YFA0307702)、国家自然科学基金(批准号: 11834015, 11974383, 12104465)和湖北省自然科学基金重点类项目(批准号: 2020CFA029)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: charlywing@wipm.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: xjliu@wipm.ac.cn

证明了 H 原子的隧穿过程是瞬时的. Quan 等^[12] 针对 H₂ 分子开展实验研究, 通过与多种理论方法对比, 给出电子隧穿延时长限为 10 as. 然而, 与以上研究结论相反, 也有部分研究的阿秒钟实验结果表明电子隧穿需要有限时间. Landsman 等^[13] 分别采用速度影像谱仪和冷靶反冲离子动量谱仪研究了 He 原子在较大光强范围内的隧穿延时, 通过与相应的理论结果^[14] 对比, 发现实验结果与 Lamor 时间定义和费曼路径积分方法得到的隧穿延时接近. Camus 等^[15] 实验研究了 Ar 和 Kr 在相同条件下的光电子末态动量分布, 并考察了二者的差别. 由于理论计算中必须包含隧穿延时和初始纵向速度分布才能较好地重复实验结果, 该工作推断隧穿过程必然伴随着确定的延时.

导致研究结论不一致的一个重要原因是, 阿秒钟方案的结果可能受到诸多物理效应的影响, 如库仑场效应、非绝热效应、Stark 效应、多电子屏蔽和极化效应. 目前并不清楚这些效应将如何影响阿秒钟方案的结果. 针对这一研究现状, 基于阿秒钟方案, 实验测量了一系列光强条件下 Ar 原子在椭圆偏振激光场中电离产生的光电子动量分布. 理论上使用包含库仑场效应、非绝热效应、Stark 效应、多电子屏蔽和极化效应的半经典模型, 数值计算了对应的电子动量分布. 通过对比实验测量和数值模拟结果, 提取出了 Ar 原子价电子的隧穿延时. 研究表明, 在本文研究的光强范围内, 800 nm 近圆偏振激光场中 Ar 原子的价电子隧穿延时长限为 10 as. 数值计算和分析表明, 阿秒钟方案中, 考虑多电子屏蔽效应对得到的隧穿延时影响最小, 而考虑非绝热效应的影响最显著.

2 实验方案

本文的实验测量采用冷靶反冲离子动量成像谱仪 (COLTRIMS) 完成. 商用钛宝石飞秒激光器 (Femtopower Compact PRO CE-Phase HP/HR) 产生中心波长 800 nm, 重复频率 5 kHz, 脉宽 30 fs, 单脉冲能量 0.8 mJ 的线偏振激光脉冲. 实验中采用消色差半波片和格兰泰勒棱镜的组合来调节激光光强, 并进一步利用宽带四分之一波片得到椭圆偏率为 0.7, 激光偏振长轴平行于 z 轴的椭圆偏振激光场. 进入 COLTRIMS 谱仪作用腔的激光脉冲被焦距为 75 mm 的凹面镜反射, 并聚焦于超声 Ar

原子束上, 与其相互作用后产生光电子和离子. 在谱仪内部均匀直流电场 ($E = 25$ V/cm) 和磁场 ($B = 9$ Gs, 1 Gs = 10^{-4} T) 的作用下, 光电子和离子飞向各自带有延迟线阳极的微通道板探测器, 并被其探测. 光电子和离子的三维动量分布可由探测器测量的飞行时间和碰撞位置得到. 本文中, 激光光强由近圆偏振激光场中原子电离产生的电子动量分布标定^[16].

3 理论方法

为揭示不同物理效应对阿秒钟实验方案研究结果的影响, 使用半经典理论模型^[17–19] 对原子在激光场中的电离过程进行数值模拟. 半经典理论方法的优势在于计算量小, 且可通过研究特定电子轨道揭示直观物理图像. 在本工作中, 采用半经典理论方法, 可方便地比较多种物理效应对实验结果的影响. 该模型目前已被广泛应用于强场电离研究^[20–24]. 除非专门说明, 本文默认采用原子单位制 (a.u.).

在半经典理论计算中, 电子通过隧穿跃迁到连续态^[25,26] 后的运动使用牛顿方程来描述^[27–32]:

$$\frac{d^2 r}{dt^2} = -E(t) - \nabla V(r), \quad (1)$$

其中 $E(t) = (E_x(t), 0, E_z(t))$ 是椭圆偏振激光电场:

$$\begin{aligned} E_x(t) &= a(t) \frac{E_0 \varepsilon}{\sqrt{1 + \varepsilon^2}} \sin(\omega t), \\ E_z(t) &= a(t) \frac{E_0}{\sqrt{1 + \varepsilon^2}} \cos(\omega t), \end{aligned} \quad (2)$$

E_0 是激光电场振幅, ε 是椭圆率, ω 是激光角频率, $a(t)$ 是包络函数.

$$a(t) = \begin{cases} 0, & t \leq 0, \\ 1, & 0 < t \leq 10T, \\ \cos^2\left(\pi \frac{t - 10T}{6T}\right), & 10T < t \leq 13T, \\ 0, & t > 13T, \end{cases} \quad (3)$$

式中, T 为激光光学振荡周期. 对于只考虑库仑场效应的情况, 电子感受到的有效势为

$$V = -Z_{\text{eff}}/r, \quad (4)$$

其中, $Z_{\text{eff}} = \sqrt{2I_p}$ 为有效核电荷数, r 表示隧穿电子和离子实之间的距离.

如果认为电子在激光场和库仑场联合势垒中的隧穿过程是绝热的, 可采用准静态近似^[25] 来处

理电子的隧穿过程. 在抛物坐标系中, 隧穿电子的初始位置可通过解薛定谔方程来获得^[26]:

$$\frac{d^2\Psi}{d\eta^2} + \left(\frac{I_p}{2} + \frac{1}{2\eta} + \frac{1}{4\eta^2} + \frac{E\eta}{4} \right) \Psi = 0, \quad (5)$$

式中 I_p 是原子电离势. 电子感受到的有效势为 $U(\eta) = -\left(\frac{1}{4\eta} + \frac{1}{8\eta^2} + \frac{E\eta}{8}\right)$. 在椭圆偏振激光场的偏振平面 (x - z 平面) 内, 激光电场方向不断旋转. 这里引入一个与激光电场旋转速度相同的转动坐标系 (x' , y' , z'), 使得椭圆偏振激光电场方向始终位于 z' 方向. 在该转动坐标系中, 电子隧穿之后的初始位置为 $x'_0 = y'_0 = 0$, $z'_0 = -\frac{1}{2}\eta_0$, 初始动量为 $v'_{x0} = v_{\text{per}} \cos \phi$, $v'_{y0} = v_{\text{per}} \sin \phi$, $v'_{z0} = 0$, 其中 v_{per} 是垂直于瞬时激光电场方向的电子横向初始速度, ϕ 为 x' - y' 平面内 v_{per} 和 x' 之间的夹角. 假设电子隧穿发生在 t_0 时刻, 将旋转坐标系下电子的初始位置投影到实验室坐标系中得 $x_0 = -\frac{1}{2}\eta_0 \cos[\arctan[\varepsilon \tan(\omega t_0)]]$, $y_0 = 0$, $z_0 = -\frac{1}{2}\eta_0 \sin[\arctan[\varepsilon \tan(\omega t_0)]]$. 同样可得电子在实验室坐标系中的初始速度为

$$\begin{aligned} v_{x0} &= v_{\text{per}} \cos \phi \cos[\arctan[\varepsilon \tan(\omega t_0)]], \\ v_{y0} &= v_{\text{per}} \sin \phi, \\ v_{z0} &= -v_{\text{per}} \cos \phi \sin[\arctan[\varepsilon \tan(\omega t_0)]]. \end{aligned}$$

而每条轨道的权重, 即电离率为

$$\begin{aligned} \Omega(t_0, v_{\text{per}}) &= \Omega(0)\Omega(1), \\ \Omega(0) &= \frac{4(2I_p)^2}{|E|} \exp\left[\frac{-2(2I_p)^{\frac{3}{2}}}{3|E|}\right], \\ \Omega(1) &= \frac{|v_{\text{per}}|(2I_p)^{\frac{1}{2}}}{\pi |E|} \exp\left[\frac{-v_{\text{per}}^2(2I_p)^{\frac{1}{2}}}{|E|}\right]. \end{aligned} \quad (6)$$

如果认为电子在激光场和库仑场联合势垒中的隧穿过程是非绝热的, 则应考虑非绝热效应对隧穿电子的隧穿出口、电子初始速度和电离率的影响^[33,34]. 在采用鞍点近似的 S-Matrix 理论中^[35,36], 鞍点解 $t_s = t_0 + it_i$ 对应电子轨道的贡献最重要, 这里 t_0 是上文提到的隧穿时刻, t_i 为电子在势垒下演化的虚时间. 电子末态动量 p 与初始动量 p_0 的关系可以表示为 $p = p_0 - A(t)$. 实验室坐标系下的初始动量 p_0 可由旋转坐标系下平行于瞬时激光电场的分量 $p_{//}$ 和垂直于瞬时激光电场的分量 p_{\perp} 来表示, $p_{x0} = p_{//} \sin \theta + p_{\perp} \cos \theta$, $p_{z0} = p_{//} \cos \theta - p_{\perp} \sin \theta$, θ 为偏振平面内瞬时激光电场与 z 轴的夹角, 而 $p_{//}$ 可由下式得到:

$$p_{//} = \frac{(1 - \varepsilon^2)E_0 \sin(\omega t_0) \cos(\omega t_0) [\cosh(\omega t_i) - 1]}{a\omega}, \quad (7)$$

其中 $a = \sqrt{\cos^2(\omega t_0) + \varepsilon^2 \sin^2(\omega t_0)}$ 是归一化的瞬时激光场. 电离率可以表示为

$$\begin{aligned} \Omega &= \exp\left[-2\left(\frac{p^2}{2} + I_p + U_p\right)t_i\right. \\ &\quad + 2p_z \frac{E_0}{\omega^2} \sin(\omega t_0) \sinh(\omega t_i) \\ &\quad - 2p_x \frac{\varepsilon E_0}{\omega^2} \cos(\omega t_0) \sinh(\omega t_i) \\ &\quad \left. + \frac{E_0^2(1 - \varepsilon^2)}{4\omega^3} \cos(2\omega t_0) \sinh(2\omega t_i)\right], \end{aligned} \quad (8)$$

其中, 有质动能 $U_p = \frac{(1 + \varepsilon^2)E_0^2}{4\omega^2}$, 动量 $p = \sqrt{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}$.

电子的隧穿出口可由其在势垒下的轨道 $\mathbf{r}_0(t) = \int_{t_s}^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]dt'$ 来计算, 其三维分量为

$$\begin{aligned} x(t) &= p_x(t - t_s) + \frac{\varepsilon E_0}{\omega^2} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_s)], \\ z(t) &= p_z(t - t_s) + \frac{E_0}{\omega^2} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_s)], \\ y(t) &= p_y(t - t_s), \end{aligned}$$

当 $t = t_0$ 时, $\mathbf{r}_0(t)$ 的实部就是隧穿出口位置:

$$\begin{aligned} x_0 &= \text{Re}x(t_0) = \frac{\varepsilon E_0}{\omega^2} \sin(\omega t_0) [1 - \cosh(\omega t_i)], \\ z_0 &= \text{Re}z(t_0) = \frac{E_0}{\omega^2} \cos(\omega t_0) [1 - \cosh(\omega t_i)], \\ y_0 &= \text{Re}y(t_0) = 0, \end{aligned} \quad (9)$$

在计算中, 隧穿时刻 t_0 和初始电子横向速度 p_{\perp} 通过随机数给出, t_i 可通过求解鞍点方程^[35,36]得到, 而电子初始纵向速度 $p_{//}$, 电离概率 Ω 以及隧穿出口 x_0 , y_0 , z_0 分别由公式 (7), (8), (9) 给出, 从而将非绝热效应对隧穿过程的影响体现在电子轨道的初始条件.

为考虑多电子屏蔽效应的影响, 这里采用 Hartree-Fock-Slater 模型势作为一价 Ar 离子的束缚势. 该束缚势可写成如下形式^[37,38]:

$$U(r) = -\frac{1}{r} - \frac{\Phi(r)}{r}, \quad (10)$$

$$\Phi(r) = b \exp(-cr) + (Z - b - 1) \exp(-dr), \quad (11)$$

其中 $\Phi(r)$ 为多电子屏蔽效应的影响. 在本文中,

(11) 式的参数取值为 $Z = 18$, $b = 5.4$, $c = 1$, $d = 3.682$ 时可准确模拟一价 Ar 离子的束缚势. 如果进一步考虑离子实多电子极化效应的影响, 则束缚势可表示为 [31,39]

$$U(r) = -\frac{1}{r} - \frac{\Phi(r)}{r} - \frac{\alpha_I E(t) \cdot r}{r^3}. \quad (12)$$

在本文中, 为考虑 Stark 效应的影响, 原子的电离势可表示为 [40]

$$I_p = I_{p0} + \frac{1}{2}(\alpha_N - \alpha_I)E_0^2, \quad (13)$$

其中 I_{p0} 是不考虑外场情况下的电离势, α_N 是 Ar 原子极化率, α_I 是一价 Ar 离子极化率.

为更准确地对比实验测量和理论计算结果, 在计算中考虑了聚焦平均效应 [41]. 作用区光强分布为

$$I(r, z) = I_0 \left(\frac{R_0}{R(z)} \right)^2 \exp \left[-2 \left(\frac{r}{R(z)} \right)^n \right],$$

其中 I_0 为激光场的峰值光强, r 为待研究原子到激光束中心轴的距离, z 为沿激光传播方向的坐标, $R(z) = R_0 [1 + (z/z_R)^2]^{1/2}$, 这里瑞利长度 $z_R = \pi R_0^2 / \lambda$, λ 是激光波长, R_0 是激光焦点处的束腰半径. 谱仪中激光束瑞利长度 0.9 mm, 而作用腔中超声束半径 1.0 mm. 考虑到超声束半径与瑞利长度接近, 可认为在作用区内光强分布与三维高斯分布接近. 考虑三维聚焦平均时, 单位体积内电离率由 $\Omega(I, p)$ 表示, 则 $\frac{d^3 N(p)}{dr^3} = \Omega(I, p)$. 焦点附近的光束体积可以表示为 $V = \pi \int_{-z_{\max}}^{z_{\max}} r^2(I, z) dz$, 这里 $r(I, z)$ 可由上文中的 $I(r, z)$ 得到. 最终电离产量分布为

$$N_{3D}(p) = \int \Omega(I, p) \frac{dV}{dI} dI \\ = \frac{\pi R_0^2 z_R}{3} \int_0^{I_0} \frac{dI}{I^{\frac{5}{2}}} \sqrt{I_0 - I} (2I + I_0) \Omega(I, p). \quad (14)$$

4 结果分析

实验测量得到的 Ar 原子在 800 nm 椭圆偏振光偏振平面中的典型光电子二维动量分布如图 1(a) 所示, 其对应的角分布如图 1(b) 所示. 激光峰值光强为 1.5×10^{14} W/cm², 椭圆率为 0.7. 图 1(c) 和图 1(d) 是相同条件下的半经典理论计算结果. 图 1(a) 中的插图标识出激光偏振长轴和短轴的方向. 简单推导可知 [42,43], 如果忽略库仑场的影响, 且电子在激光电场旋转到 z 方向 (激光偏振长轴方向) 时发生

隧穿, 则电子的最终速度将沿着 x 方向 (垂直于长轴方向). 然而, 由图 1(a), (b) 可见, 光电子角分布的最大值并未准确分布在短轴 (x) 方向. 进一步观察可知, 动量分布和角分布也并非理想高斯分布. 图 1(c), (d) 中的半经典计算结果也有类似特征. 根据文献 [17] 的分析可知, 这一现象的来源是库仑场效应. 长程库仑势一方面会导致整个光电子二维动量分布发生转动, 另外一方面也会使光电子二维动量分布和角分布发生畸变.

本文采用文献 [17] 提出的方法得到激光峰值电场对应的电子发射方向, 并将该方向与激光场短轴方向的夹角定义为 α . 图 1(a), (c) 标示出 α 的正方向. 图 1(b) 展示了从图 1(a) 中的实验数据得到的光电子角分布. 对于本文中的多周期超快激光场而言, 激光场的光学振荡可看成振幅不变的正弦或余弦振荡. 对于此类振荡而言, 通过选择激光电场为零的两个相邻时间点之间的半个光学周期, 可使得激光电场峰值附近的电场形式前后对称. 进一步由激光电场与原子电离率具有一一对应的关系可知, 该激光电场峰值对应的电子最终出射角度可将该时间范围内的电子产量二等分. 文献 [17] 的数值计算表明这一结论可推广到常用多周期激光场整个脉冲的情况. 因此, 可通过寻找图 1(b) 的角分布中将电子产量二等分的角度来确定 α . 本文采用该方法从实验测量和数值计算数据中得到的 α 如图 1(b) 和图 1(d) 中向上箭头所示. 图 1(b) 和图 1(d) 中 β 是相应光电子产量最大值所对应的角度, 也是前人阿秒钟实验中所使用的偏转角. 相较 β , α 更准确地给出了在激光峰值电场发生隧穿的光电子轨道对应的角度.

为系统研究椭圆偏振激光场中 Ar 原子的价电子隧穿延时问题, 实验测量了一系列光强条件下 Ar 原子的光电子动量分布. 使用上文描述的方法, 提取了在激光峰值电场发生隧穿的光电子轨道对应的偏转角度 α , 如图 2(a) 中黑色实心方框所示. 测量结果表明随着激光光强升高, α 逐渐减小. 该结果与前人针对惰性气体原子和小分子体系的阿秒钟方案实验测量结果一致. 采用第 3 节中理论方法部分介绍的半经典模型, 分别计算了仅包含库仑场效应 (CP 海军蓝空心三角形)、包含库仑场效应和多电子屏蔽效应 (Screen.+CP 蓝色空心四边形)、包含库仑场效应和非绝热效应 (Nonad.+CP 橄榄绿空心五边形)、包含库仑场效应和多电子极化效

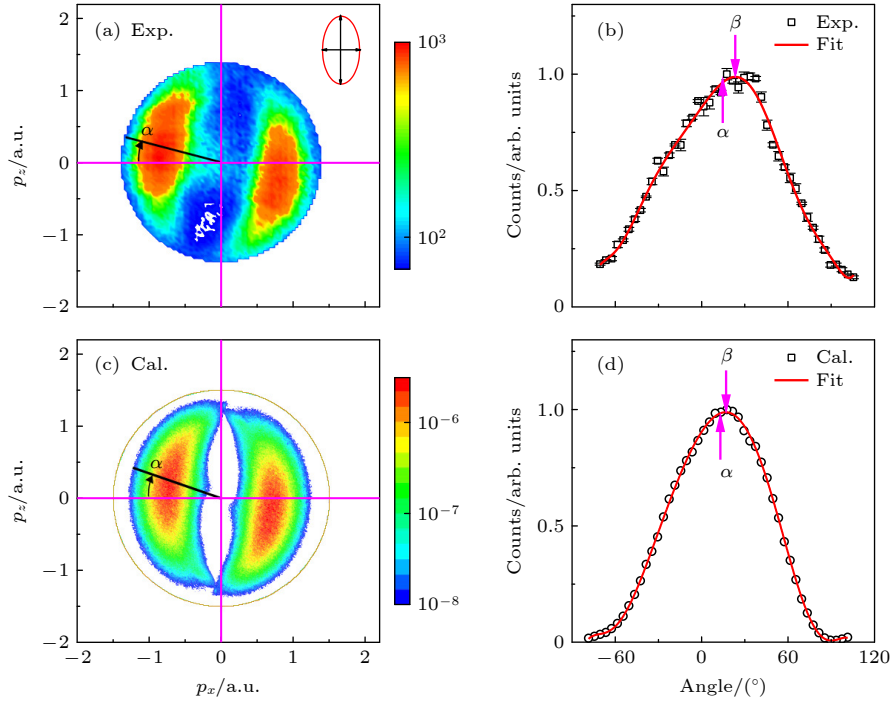


图 1 (a) 实验测量的 Ar 原子光电子动量分布, 激光波长 800 nm, 光强 1.5×10^{14} W/cm², 椭圆率 0.7, 插图标识出激光场偏振面的长轴和短轴方向; (b) 黑色方框表示从 (a) 中提取的 Ar 原子光电子角度分布; (c) 半经典理论计算的光电子动量分布, 激光参数与 (a) 相同; (d) 黑色圆圈表示从 (c) 中提取的 Ar 原子光电子角度分布. (b)(d) 中的红色曲线代表采用最小二乘法对实验测量和数值模拟数据的拟合结果

Fig. 1. (a) The measured photoelectron momentum distributions of Ar subject to the laser electric field with a wavelength of 800 nm, an intensity of 1.5×10^{14} W/cm², and an ellipticity of 0.7, the inset shows the directions of the major and minor axes of the polarization ellipse of the laser field; (b) the black boxes indicate the photoelectron angular distribution extracted from the data in (a); (c) the photoelectron momentum distributions calculated by the semiclassical model with the laser parameters identical to those of (a); (d) the black circles represent the photoelectron angular distribution extracted from the data in (c). The red curves in (c) and (d) show the results of the least square fittings of experimental data and numerical calculations, respectively.

应 (Polar.+CP 洋红色空心五角星)、包含库仑场效应和 Stark 效应 (Stark+CP 深黄色空心六边形)、以及同时考虑以上提到的所有物理效应 (All 红色空心圆形) 的情况下 α 随光强的演化. 从图 2(a) 可见, 在本文所研究的光强范围内, 与仅考虑库仑场效应的情况相比, 同时考虑多电子屏蔽效应和库仑场效应, 以及同时考虑 Stark 效应和库仑场效应两种情况下, α 变化较小. 而同时考虑多电子极化效应和库仑场效应, 以及同时考虑非绝热效应和库仑场效应两种情况下, α 显著变小, 且这些效应的影响随光强增大而增强. 在本文所考察的几种物理效应中, 相对于仅有库仑场效应的情况而言, 对 α 变化影响最小的是多电子屏蔽效应, 其次是 Stark 效应, 再次是多电子极化效应, 而影响最大的是非绝热效应. 阿秒钟实验方案中, 需要通过比较实验测量与半经典理论计算得到的 α 来提取隧穿延时. 因此, 对于半经典理论计算结果影响越大的物理效应, 也将对最终提取的电子隧穿延时结果

影响越大. 由以上讨论可知, 阿秒钟方案中, 考虑多电子屏蔽效应对得到的隧穿延时影响最小, 而考虑非绝热效应的影响最大.

为从实验测量和理论计算结果中提取隧穿延时, 需使用角度 α 与隧穿时刻的对应关系. 对椭圆偏振激光场而言, 激光电场矢量旋转角 $\Delta\theta$ 与隧穿时刻 Δt 之间的关系 [44] 为

$$\Delta t = \arctan(1/\varepsilon \tan \Delta\theta)/\omega, \quad (15)$$

使用 (15) 式, 并假定 $\Delta\theta = \alpha$, 可从图 2(a) 中的 α 得到电子隧穿发生的时刻, 结果如图 2(b) 所示. 图 2(b) 中的黑色实心方块为从图 2(a) 中的实验测量 α 得到的对应电子隧穿时刻. 如该图所示, 实验得到的电子隧穿时刻随光强增大而呈缓慢减小的趋势. 图 2(b) 中黑色空心圆 (without FA) 为忽略聚焦平均效应的半经典理论计算结果, 黑色空心四边形 (FA) 为考虑三维聚焦平均效应后的半经典理论计算结果. 考虑聚焦平均效应之后, 半经典理论

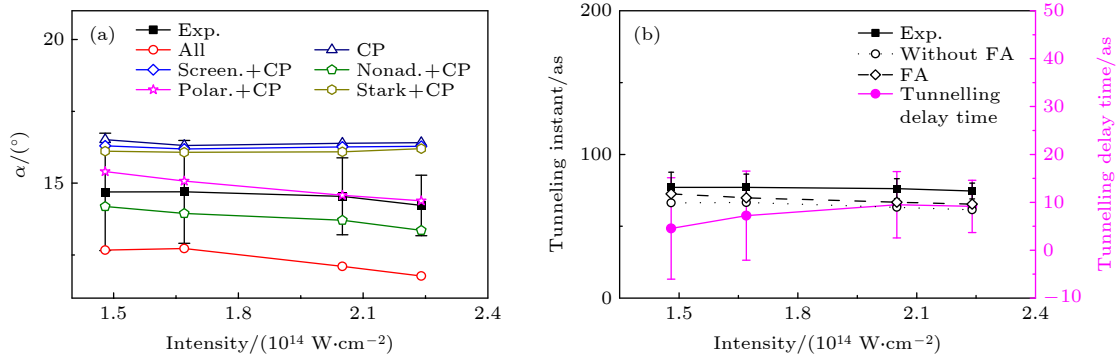


图 2 (a) 实验测量与半经典理论计算得到的 α 随激光光强的依赖曲线; 黑色实心方块 (Exp.) 为实验测量结果. 海军蓝空心三角形 (CP) 为仅包含库仑场效应的计算结果、蓝色空心四边形 (Screen.+CP) 为包含库仑场效应和多电子屏蔽效应的计算结果、橄榄绿空心五边形 (Nonad.+CP) 为包含库仑场效应和非绝热效应的计算结果、洋红色空心五角星 (Polar.+CP) 为包含库仑场效应和多电子极化效应的计算结果、深黄色空心六边形 (Stark.+CP) 为包含库仑场效应和 Stark 效应的计算结果, 红色空心圆形 (All) 为以上所有效应同时考虑的情况. (b) 由 (a) 中 α 得到的电子隧穿时刻随光强的依赖曲线. 黑色实心方块 (Exp.) 为实验结果, 黑色空心圆 (Without FA) 为单一光强计算结果, 黑色空心四边形 (FA) 为考虑聚焦平均效应的结果. 采用阿秒钟方案得到的隧穿延时随激光光强的变化由洋红色实心圆 (Tunneling delay time) 表示 (右侧纵轴)

Fig. 2. (a) The measured and calculated intensity dependence of α . The filled black boxes (Exp.) show the experimental results. The open navy triangles (CP), open blue diamonds (Screen.+CP), open olive pentagons (Nonad.+CP), open magenta pentacles (Polar.+CP), open dark yellow hexagons (Stark.+CP), and open red circles (All) indicate the semiclassical calculations where only the influence of Coulomb potential, the influence of both Coulomb potential and the multi-electron screening effect, the influence of both Coulomb potential and the non-adiabatic effect, the influence of both Coulomb potential and multi-electron polarization effect, the influence of both Coulomb potential and the Stark effect, and all the physical effects have been considered, respectively. (b) The laser intensity dependence of tunneling instant obtained from the measured and calculated α in (a). The filled black boxes (Exp.) represent the experimental data. The open black circles (Without FA) indicate the calculation without focusing average. The open black diamonds (FA) represent the calculation where the focusing average has been considered. The filled magenta circles (Tunneling delay time) indicate the intensity dependence of the tunneling delay time which is obtained based on the attoclock scheme.

计算结果与实验数据更加接近. 图 2(b) 中, 将二者的偏差用洋红色实心圆表示 (图 2(b) 右侧纵轴). 由该结果可知, 在本文所研究的光强范围内, 强激光场中 Ar 原子的价电子隧穿延时接近或小于实验测量误差, 并可知其上限为 10 as.

为进一步深入理解阿秒钟实验中相关物理效应的影响, 分别计算了在激光峰值电场发生隧穿的典型电子轨道在考虑多种物理效应影响的结果. 图 3 对比了仅考虑库仑场效应和同时考虑库仑场效应及非绝热效应两种情况下的典型电子轨道.

图 3(a) 展示了在激光峰值电场发生隧穿的典型电子轨道在隧穿出口附近的演化. 计算结果表明, 考虑相同物理效应的情况下, 激光光强越高, 隧穿出口距离库仑场中心越近 (红色粗点线和比红色细实线更接近 $z = 0$, 蓝色粗点划线比蓝色细划线更接近 $z = 0$). 与仅有库仑场效应的计算结果 (红色细实线和红色粗点线) 相比, 非绝热效应 (蓝色细划线和蓝色粗点划线) 会导致隧穿出口离库仑场中心更近, 这一影响在低光强条件下更加明显. 如图 3(c) 所示, p_z (沿着激光峰值电场方向的动

量) 随激光场振荡的幅度更小 (蓝色细划线位于红色细实线上方, 红色粗点线与蓝色粗点划线几乎重合), 表明非绝热效应所带来的隧穿出口差别使得低光强条件下电子在隧穿出口感受到的库仑场影响更大. 如图 3(b) 所示, 非绝热效应会导致电子轨道在 x 方向上 (垂直于激光峰值电场方向) 有明显的初始速度, 且光强越高, 这个初始速度越大 (在 0 时刻, 蓝色粗点划线位于蓝色细划线下). 电子初始横向速度会导致最终光电子能量升高, 相应地减弱库仑场的影响. 另一方面, 考虑到非绝热效应会导致隧穿出口离库仑场中心更近, 从而增强库仑场影响, 因此理解非绝热效应的总体影响还需要进一步考察光电子最终的动量和位置.

图 3(d)–(f) 为激光脉冲快结束时典型电子轨道随时间演化情况. 如图 3(d) 所示, 在激光场结束时, 两种光强条件下, 同时考虑非绝热效应和库仑场效应的电子轨道到达的位置离库仑场中心更远, 表明非绝热效应总体上使得库仑场的影响减弱, 且在 x 方向上的相对差别比 z 方向上相对差别更大. 由于 z 方向的相对差别主要来自于非绝热效应对

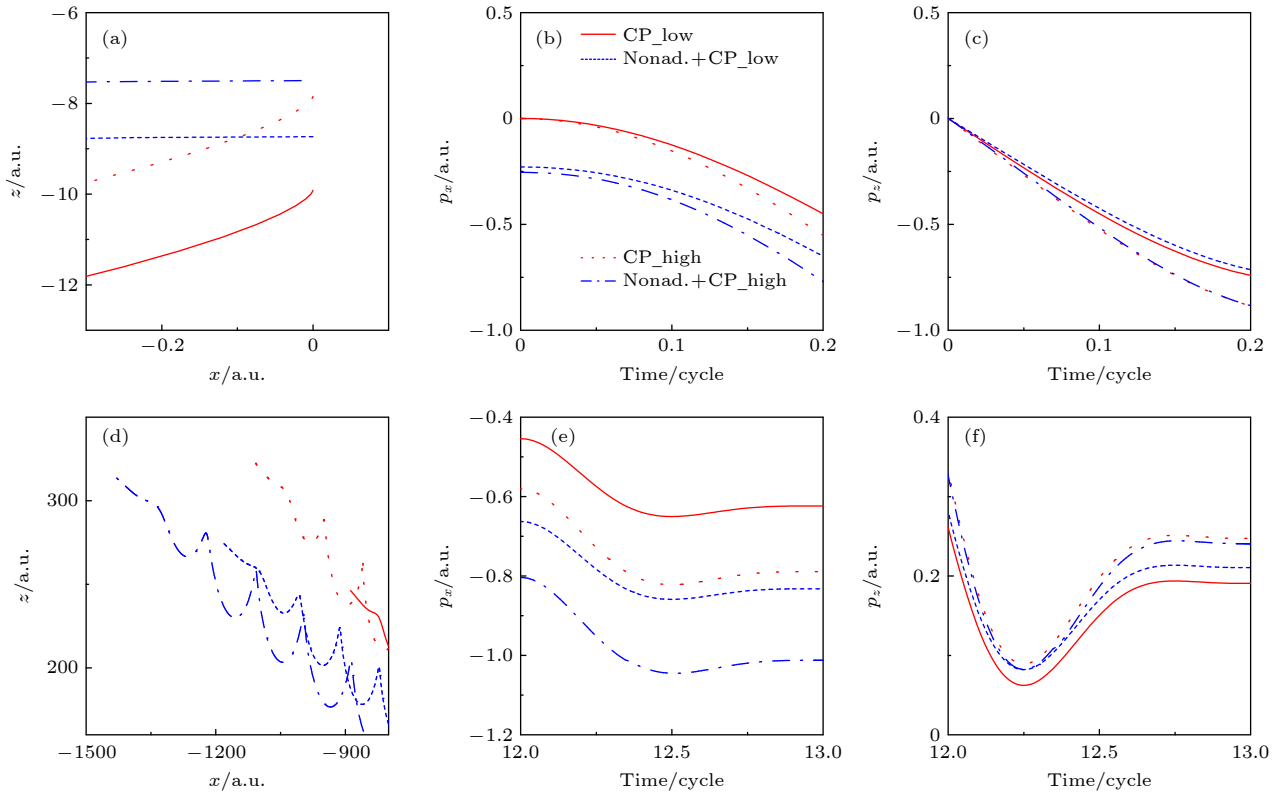


图 3 半经典理论计算的在激光峰值电场发生隧穿的电子轨道 (a), (d) 隧穿刚发生时和激光脉冲快结束时电子轨道的空间演化; (b), (e) 隧穿刚发生时和激光脉冲快结束时, 沿 x 方向电子动量 (p_x) 随时间的演化; (c), (f) 隧穿刚发生时和激光脉冲快结束时, 沿 z 方向电子动量 (p_z) 随时间的演化, 其中红色细实线和红色粗点线表示仅考虑库仑场效应的轨道, 蓝色细划线和蓝色粗点划表示同时考虑库仑场和非绝热效应的轨道, 红色细实线和蓝色细划表示激光光强为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的计算结果, 红色粗点线和蓝色粗点划表示激光光强为 $2.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的计算结果

Fig. 3. The typical trajectories calculated by the semiclassical model for the photoelectrons tunneling from the peak of laser field: (a), (d) The spatial evolution of electron trajectories around the tunneling instant and the end of the laser pulse; (b), (e) the temporal evolution of photoelectron momenta along the x direction (p_x) around the tunneling instant and the end of the laser pulse; (c), (f) the temporal evolution of photoelectron momenta along z direction (p_z) around the tunneling instant and the end of the laser pulse. The thin red solid and thick red dotted lines represent the trajectories calculated by the semiclassical model where only the influence of Coulomb potential is considered. The thin blue dashed and thick blue dot-dashed lines represent the trajectories calculated by the semiclassical model where the influence of both Coulomb potential and the nonadiabatic effect are considered. The thin red solid and thin blue dashed lines indicate the trajectories which are calculated at $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. The thick red dotted and thick blue dot-dashed lines indicate the trajectories which are calculated at $2.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

隧穿出口的影响 (如图 3(a) 所示), 而 x 方向的相对差别主要来自于非绝热效应对电子初始横向速度的影响 (如图 3(b) 所示), 图 3(d) 的结果说明电子初始横向速度的变化所产生的影响更大. 比较图 3(e) 和图 3(f) 的结果可知, 尽管随着光强增大, p_x 和 p_z 都在增大, 但 p_x 的相对值增加更快. 结合图 1 中 α 的定义可知, 这一影响将导致 α 随光强减小, 从而解释了图 2(a) 中非绝热效应导致 α 随光强减小的现象.

为比较不同物理效应的影响, 在图 4 中给出了, 在考虑多个物理效应的情况下, 激光峰值电场对应典型电子轨道隧穿时刻的电子初始位置、电子初始动量以及脉冲结束时电子最终位置和最终动

量. 由图 4(a), (c) 可知, 除了非绝热效应, 其它物理效应对电子轨道初始条件的影响主要体现在位于 z 方向隧穿出口的差别. 相应地, 不同物理效应对应的典型轨道在脉冲结束时的最终位置 (图 4(b)) 和最终动量 (图 4(d)) 差别也主要体现在 z 方向上. 除了多电子极化效应的影响以外, 差别的大小顺序正好与隧穿出口一致. 由公式 (12) 可知, 多电子极化效应对应的束缚势不仅与电子所处的位置有关, 而且与激光振荡电场的大小有关. 而其他效应, 比如: 库仑场效应和多电子屏蔽效应, 所对应的束缚势仅仅与电子所处的位置有关. 所以, 随着激光电场不断振荡, 多电子极化效应对应的束缚势变化更加剧烈. 并导致对应的电子典型轨道受束缚势的

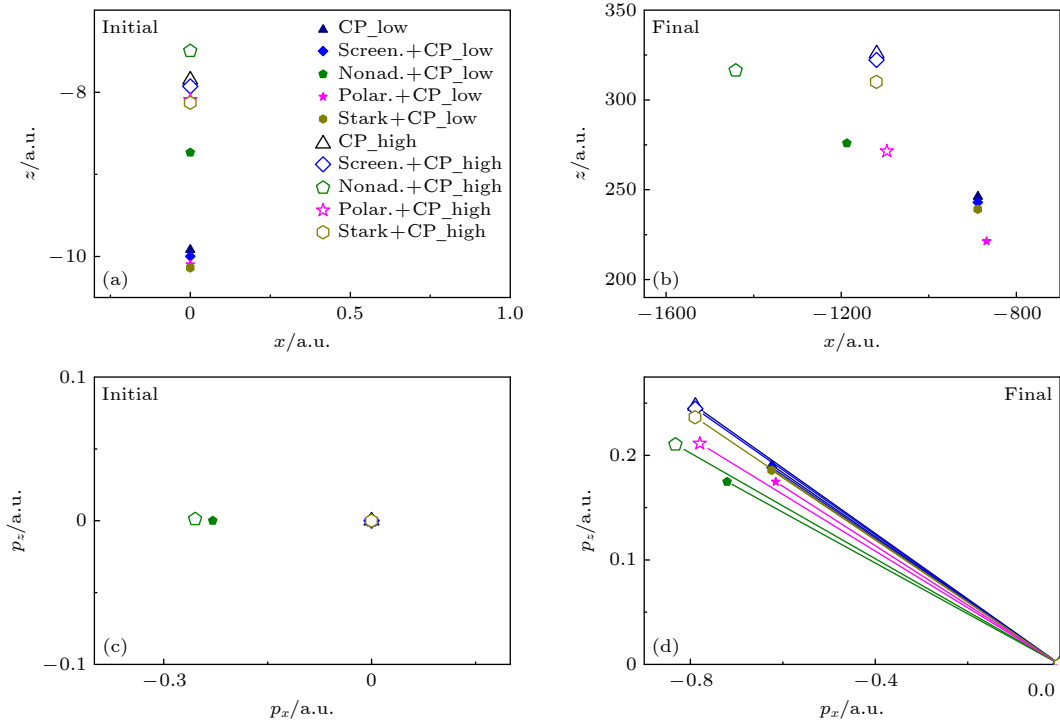


图 4 (a), (c) 半经典理论计算得到的激光峰值电场对应电子轨道在隧穿时刻 (initial) 电子的位置和动量; (b), (d) 半经典理论计算得到的激光峰值电场对应电子轨道在脉冲结束时 (final) 电子的位置和动量; (d) 中连接原点和对应符号的实线标示出电子的最终出射方向, 海军蓝三角形 (CP) 为仅包含库仑场效应的计算结果、蓝色四边形 (Screen.+CP) 为包含库仑场效应和多电子屏蔽效应的计算结果、橄榄绿五边形 (Nonad.+CP) 为包含库仑场效应和非绝热效应的计算结果、洋红色五角星 (Polar.+CP) 为包含库仑场效应和多电子极化效应的计算结果、深黄色六边形 (Stark+CP) 为包含库仑场效应和 Stark 效应的计算结果, 实心 (Low) 和空心 (High) 分别表示激光光强为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $2.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的相应计算结果

Fig. 4. (a), (c) The calculated positions and the momenta of the photoelectrons tunneling from the peak of laser field at the tunneling instant (initial); (b), (d) the calculated positions and the momenta of the photoelectrons tunneling from the peak of laser field at the end of the laser pulse (final); in (d), the solid lines connecting the origin and the symbols indicate the corresponding emission angles of the photoelectrons at the end of the laser pulse. The navy triangles (CP), blue diamonds (Screen.+CP), olive pentagons (Nonad.+CP), magenta pentacles (Polar.+CP), and dark yellow hexagons (Stark+CP) indicate the semiclassical calculations where only the influence of Coulomb potential, the influence of both Coulomb potential and the multi-electron screening effect, the influence of both Coulomb potential and the non-adiabatic effect, the influence of both Coulomb potential and multi-electron polarization effect, and the influence of both Coulomb potential and the Stark effect have been considered, respectively. The filled (Low) and open (High) Symbols indicate the results calculated at $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and $2.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, respectively.

影响, 与仅考虑库仑场影响的情况相比, 在 z 方向和 x 方向均变大, 因此多电子极化效应的影响比除了非绝热效应以外的其他效应影响更大. 不仅如此, 由于在 z 方向激光峰值电场更大, 所以多电子极化效应会导致典型电子轨道在 z 方向变化更大. 为了清楚地表现这一影响, 注意到同时考虑库仑场效应和 Stark 效应, 以及同时考虑库仑场效应和多电子极化效应, 两种情况下隧穿出口非常接近 (图 4(a) 中深黄色六边形与洋红色五角星的位置非常接近), 可通过对比这两种情况下最终电子位置和动量, 定性揭示多电子极化效应在轨道演化过程中的影响. 由图 4(b) 和图 4(d) 可见, 与同时考虑库仑场效应和 Stark 效应的轨道 (深黄色六边形) 相比, 同时

考虑库仑场效应和多电子极化效应的轨道 (洋红色五角星) 在 z 方向电子最终位置和动量的偏移量均大于在 x 方向的偏移量. 这一结果与上文关于多电子极化效应对电子轨道演化过程影响的分析一致. 图 4(d) 给出了在考虑多种物理效应的情况下, 激光峰值对应电子轨道在脉冲结束时的动量大小. 该图中, 采用一条直线将不同物理效应对应的电子最终动量与原点相连, 标示出电子最终出射方向. 与仅考虑库仑场效应的情况 (海军蓝三角形) 相比, 偏角越大, 说明相应的物理效应影响越大. 由图 4(d) 可知, 非绝热效应 (橄榄绿五边形) 的影响最大, 其次是多电子极化效应 (洋红色五角星), 而影响最小的是多电子屏蔽效应 (蓝色四边形).

5 结 论

实验测量了 Ar 原子在椭圆偏振激光场中的光电子动量分布随激光光强的演化规律. 理论上使用包含库仑场效应、非绝热效应、Stark 效应、多电子屏蔽和极化效应的半经典理论方法对 Ar 原子的强场电离动力学进行了模拟, 得到了 Ar 原子电离产生的光电子动量角分布. 基于阿秒钟方案, 通过对比实验测量和理论计算结果, 发现在本文所研究的光强范围内, Ar 原子的价电子在椭圆偏振强激光场中的隧穿延时小于 10 as. 理论上研究了考虑库仑场效应、非绝热效应、Stark 效应、多电子屏蔽和极化效应对阿秒钟方案结果的影响, 并结合对典型轨道的分析阐明了其物理机制.

参考文献

- [1] MacColl L A 1932 *Phys. Rev.* **40** 621
- [2] Schultze M, Fieff M, Karpowicz N, et al. 2010 *Science* **328** 1658
- [3] Shafir D, Soifer H, Bruner B D, Dagan M, Mairesse Y, Patchkovskii S, Ivanov M Y, Smirnova O, Dudovich N 2012 *Nature* **485** 343
- [4] Goulielmakis E, Loh Z, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V S, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A M, Kling M F, Leone S R, Krausz F 2010 *Nature* **466** 739
- [5] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dörner R, Müller H G, Büttiker M, Keller U 2008 *Science* **322** 1525
- [6] Eckle P, Smolarski M, Schlup P, Biegert J, Staudte A, Schöffler M, Müller H G, Dörner R, Keller U 2008 *Nat. Phys.* **4** 565
- [7] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Wang X, Eberly J H, Dörner R, Keller U 2011 *New J. Phys.* **13** 093008
- [8] Pfeiffer A N, Cirelli C, Smolarski M, Dimitrovski D, Abu-samha M, Madsen L B, Keller U 2012 *Nat. Phys.* **8** 76
- [9] Sainadh U S, Xu H, Wang X, Atia-Tul-Noor A, Wallace W C, Douguet N, Bray A, Ivanov I, Bartschat K, Kheifets A, Sang R T, Litvinyuk I V 2019 *Nature* **568** 75
- [10] Han M, Ge P, Wang J, Guo Z, Fang Y, Ma X, Yu X, Deng Y, Wörner H J, Gong Q, Liu Y 2021 *Nat. Photonics* **15** 765
- [11] Torlina L, Morales F, Kaushal J, Ivanov I, Kheifets A, Zielinski A, Scrinzi A, Müller H G, Sukiasyan S, Ivanov M, Smirnova O 2015 *Nat. Phys.* **11** 503
- [12] Quan W, Serov V V, Wei M, Zhao M, Zhou Y, Wang Y, Lai X, Kheifets A S, Liu X 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 223204
- [13] Landsman A S, Weger M, Maurer J, Boge R, Ludwig A, Heuser S, Cirelli C, Gallmann L, Keller U 2014 *Optica* **1** 343
- [14] Landsman A S, Keller U 2015 *Phys. Rep.* **547** 1
- [15] Camus N, Yakaboylu E, Fechner L, Klaiber M, Laux M, Mi Y, Hatsagortsyan K Z, Pfeifer T, Keitel C H, Moshhammer R 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 023201
- [16] Quan W, Yuan M, Yu S, Xu S, Chen Y, Wang Y, Sun R, Xiao Z, Gong C, Hua L, Lai X, Liu X, Chen J 2016 *Opt. Express* **24** 23248
- [17] Zhi-Lei Xiao, Wei Quan, Song-Po Xu, Shao-Gang Yu, Xuan-Yang Lai, Jing Chen, Liu X-J 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 043201
- [18] Xiao Z, Quan W, Xu S, Yu S, Wang Y, Zhao M, Wei M, Zhou Y, Lai X, Chen J, Liu X 2020 *Chin. Opt. Lett.* **18** 010201
- [19] Xiao Z, Quan W, Yu S, Lai X, Liu X, Wei Z, Chen J 2022 *Opt. Express* **30** 14873
- [20] Quan W, Hao X, Chen Y, Yu S, Xu S, Wang Y, Sun R, Lai X, Wu C, Gong Q, He X, Liu X, Chen J 2016 *Sci. Rep.* **6** 27108
- [21] Chen J, Liu J, Chen S G 2000 *Phys. Rev. A* **61** 033402
- [22] Hao X, Wang G, Jia X, Li W, Liu J, Chen J 2009 *Phys. Rev. A* **80** 023408
- [23] Quan W, Lin Z, Wu M, Kang H, Liu H, Liu X, Chen J, Liu J, He X T, Chen S G, Xiong H, Guo L, Xu H, Fu Y, Cheng Y, Xu Z Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
- [24] Wang Y, Xu S, Chen Y, et al. 2017 *Phys. Rev. A* **95** 063415
- [25] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **66A** 138
- [26] Delone N B, Krainov V P 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1207
- [27] Ye D F, Liu X, Liu J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233003
- [28] Chen J, Liu J, Zheng W M 2002 *Phys. Rev. A* **66** 043410
- [29] Fu L B, Liu J, Chen J, Chen S G 2001 *Phys. Rev. A* **63** 043416
- [30] Chen J, Liu J, Fu L B, Zheng W M 2000 *Phys. Rev. A* **63** 011404
- [31] Brabec T, Ivanov M Y, Corkum P B 1996 *Phys. Rev. A* **54** R2551
- [32] Hu B, Liu J, Chen S G 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [33] Han M, Li M, Liu M-M, Liu Y 2017 *Phys. Rev. A* **95** 023406
- [34] Li M, Liu M M, Geng J W, Han M, Sun X, Shao Y, Deng Y, Wu C, Peng L Y, Gong Q, Liu Y 2017 *Phys. Rev. A* **95** 053425
- [35] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [36] Salières P, Carré B, Le Déroff L, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milošević D B, Sanpera A, Lewenstein M 2001 *Science* **292** 902
- [37] Cloux F, Fabre B, Pons B 2015 *Phys. Rev. A* **91** 023415
- [38] Müller H G 1999 *Phys. Rev. A* **60** 1341
- [39] Dimitrovski D, Martiny C P J, Madsen L B 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053404
- [40] Dimitrovski D, Abu-samha M, Madsen L B, Filsinger F, Meijer G, Küpper J, Holmegaard L, Kallhøj L, Nielsen J H, Stapelfeldt H 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023405
- [41] Xu S, Liu M, Hu S, Shu Z, Quan W, Xiao Z, Zhou Y, Wei M, Zhao M, Sun R, Wang Y, Hua L, Gong C, Lai X, Chen J, Liu X 2020 *Phys. Rev. A* **102** 043104
- [42] Corkum P B, Burnett N H, Brunel F 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1259
- [43] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [44] Hofmann C, Landsman A S, Keller U 2019 *J. Mod. Opt.* **66** 1052

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Tunneling delay time in strong field ionization of atomic Ar*

Zhao Meng¹⁾²⁾ Quan Wei^{1)2)†} Xiao Zhi-Lei³⁾ Xu Song-Po¹⁾

Wang Zhi-Qiang¹⁾ Wang Ming-Hui¹⁾²⁾ Cheng Si-Jin¹⁾²⁾ Wu Wen-Zhuo¹⁾²⁾

Wang Yan-Lan¹⁾²⁾ Lai Xuan-Yang¹⁾²⁾ Liu Xiao-Jun^{1)2)‡}

1) (*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Innovation Academy for Precision Measurement Science and Technology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China*)

2) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Department of Physics, Hubei University, Wuhan 430062, China*)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 27 July 2022)

Abstract

“Attoclock” provides a promising experimental scheme to explore the timing of tunnel ionization of atoms and molecules in intense laser fields. In this work, we perform a systematical investigation of tunneling delay time in strong field ionization of atomic Ar, based on the “attoclock” experimental scheme. Experimentally, the laser intensity dependence of the photoelectron momentum distributions of Ar subject to strong elliptically polarized laser fields at 800 nm has been measured. Theoretically, a dedicated semiclassical model, in which the Coulomb potential effect, the nonadiabatic effect, the Stark effect, the multielectron screening and polarization effect have been well considered, is employed to simulate the ionization dynamics of Ar. By comparing the experimental and simulated results, an upper limit of 10 attoseconds for the tunneling delay time of Ar has been derived for the laser intensity ranges explored in this work. In addition, the influence of various physical effects on the extracted tunneling delay time, in the context of semiclassical model, has been analyzed. It is demonstrated that, under otherwise identical conditions, consideration of multielectron screening effect will give rise to the least change of the extracted tunneling delay time. In contrast, consideration of nonadiabatic effect will lead to the most significant change of the extracted tunneling delay time.

Keywords: attoclock, tunneling delay time, ultrafast ionization

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.71.20221295

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFA0307702), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11834015, 11974383, 12104465), and the Science and Technology Department of Hubei Province, China (Grant No. 2020CFA029).

† Corresponding author. E-mail: charlywing@wipm.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: xjliu@wipm.ac.cn

强激光场驱动Ar原子电离中的隧穿延时

赵猛 全威 肖智磊 许松坡 王志强 王明辉 成思进 吴文卓 王艳兰 赖炫扬 柳晓军

Tunneling delay time in strong field ionization of atomic Ar

Zhao Meng Quan Wei Xiao Zhi-Lei Xu Song-Po Wang Zhi-Qiang Wang Ming-Hui Cheng Si-Jin
Wu Wen-Zhuo Wang Yan-Lan Lai Xuan-Yang Liu Xiao-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233203 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221295

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221295>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

反向旋转双色椭圆场中原子隧穿电离电子的全息干涉

Photoelectron holography in tunneling ionization of atoms by counter-rotating two-color elliptically polarized laser field

物理学报. 2022, 71(9): 093202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212226>

玻色-费米超流混合体系中的相互作用调制隧穿动力学

Interaction-modulated tunneling dynamics of a mixture of Bose-Fermi superfluid

物理学报. 2022, 71(9): 090301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212168>

洛伦兹破缺标量场的霍金隧穿辐射

Hawking tunneling radiation in Lorentz-violating scalar field theory

物理学报. 2019, 68(6): 060401 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182050>

浅光晶格中量子隧穿现象的实验观测

Experimental observation of quantum tunneling in shallow optical lattice

物理学报. 2022, 71(7): 073701 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212038>

基于多组态含时Hartree-Fock方法研究电子关联对于H₂分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H₂ molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

隧穿磁阻传感器研究进展

Research progress of tunneling magnetoresistance sensor

物理学报. 2022, 71(5): 058504 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211883>

专题: 阿秒物理

优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究*

汉琳¹⁾²⁾ 苗淑莉¹⁾ 李鹏程^{1)†}

1) (汕头大学理学院物理系, 先进光学与光子学研究中心, 汕头 515063)

2) (兰州大学物理科学与技术学院, 兰州理论物理中心, 甘肃省理论物理重点实验室, 兰州 730000)

(2022年6月30日收到; 2022年8月24日收到修改稿)

高次谐波是获得阿秒紫外光源最主要的方法之一, 是强场超快领域研究的热点问题, 具有非常广泛的应用前景. 本文围绕如何产生超连续高次谐波平台及单个超短阿秒脉冲面临的问题, 概述了这方面研究的进展, 并从理论上展示了一种有效可行的方案, 即将强激光场中的含时薛定谔方程与非约束优化算法相结合, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 分别优化双色和三色组合激光场并驱动氦原子产生超连续高次谐波谱. 优化后的双色组合激光场驱动氦原子产生的超连续谐波谱平台达到了100阶, 叠加获得了最短25 as的单个阿秒脉冲; 优化后的三色组合激光场驱动氦原子产生的超连续谐波谱平台宽度达到了170阶, 叠加获得最短17 as的单个阿秒脉冲, 同时谐波转换效率也有所提高. 为了给实验提供切实可行的参考, 本文以优化的双色组合激光场情况为例, 基于同时求解含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 进一步考虑了介质宏观演化效应对单原子层次产生阿秒脉冲的影响, 发现利用远场轴外量子通道的空间选择性可以获得更短的单个阿秒脉冲.

关键词: 高次谐波, 阿秒脉冲, 强激光场, 宏观介质演化

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Ct, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221298

1 引言

激光与物质相互作用可以产生许多非线性光学现象, 如多光子电离^[1-7] (multiphoton ionization, MPI)、阈上电离^[8-12] (above-threshold ionization, ATI)、隧穿电离^[13-19] (tunneling ionization, TI)、高次谐波^[20-24] (high-order harmonic generation, HHG) 等, 其中高次谐波辐射是产生阿秒相干远紫外辐射源最有前途的方法之一. 阿秒脉冲可以实时探测物质中电子动力学过程, 使得研究物质结构的层次从分子扩展到原子内部, 为理解和控

制微观世界的动力学过程提供了强有力的工具^[25].

几十年来, 高次谐波及阿秒脉冲产生的研究引起了人们极大的兴趣. 1987年, McPherson等^[26]利用波长248 nm的KrF激光与稀有气体Ne原子相互作用, 首次在实验上观测到了高达17阶的高次谐波辐射. 1988年, Ferray等^[27]用1064 nm的Nd:YAG激光与稀有气体Xe原子相互作用, 观察到了高达33阶的高次谐波. 1993年, L'Huilier和Balcou^[28]用1053 nm的Nd:Glass激光分别与稀有气体Xe, Ar, Ne原子相互作用, 对应观测到了29阶、57阶以及135阶高次谐波辐射. 同年, Macklin等^[29]利用800 nm的红外激光与Ne原子

* 国家自然科学基金(批准号: 91850209, 12074239, 12047501)、广东省自然科学基金(批准号: 2020A1515010927)、广东省科技专项项目(批准号: 2020ST084)、广东省高校特色创新类项目(批准号: 2019KTSCX038, 2020KCXTD012)和汕头大学(批准号: NTF18030)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pchli@stu.edu.cn

气体相互作用, 观察到了 109 阶高次谐波. 高次谐波特征谱拥有独特的频谱结构^[30], 低阶谐波随着谐波阶次增加呈指数型衰减, 紧接着出现了一个平台区, 谐波强度随谐波阶次的增加无明显变化, 最后在特定阶次出现一个谐波强度快速下降的截止.

Corkum^[31] 和 Kulander 等^[32] 分别提出了半经典的“三步模型”, 很好地解释了强场高次谐波的产生过程. 首先, 库仑场在外加激光场作用下被压低形成势垒, 电子可以隧穿通过势垒, 紧接着在激光场作用下加速获得能量, 当激光场反向时电子开始减速, 部分电子反向加速回到母核附近与母核碰撞复合, 释放出多余能量, 并辐射出高次谐波. 电子复合辐射出的光子能量是电子动能和电离势能的总和, 最大瞬时动能约等于 $3.17U_p$, U_p 为有质动力能, 所以高次谐波截止位置的能量^[31] $E_{\text{Cutoff}} = I_p + 3.17U_p$, 其中 I_p 代表原子的电离能. Lewenstein 等^[33,34] 基于量子理论提出了一种强场近似模型 (strong-field approximation, SFA), 该模型计算简单, 可以解释大多数强激光场与原子分子相互作用产生的非线性光学现象, 但是该方法没有考虑库仑势的影响, 并且忽略了原子激发态对谐波的贡献, 无法精确描述原子分子在强激光场中强烈的非线性动力学过程. 数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 可以避免强场近似理论的不足, 但是求解过程计算量大, 非常耗时. Kulander^[35] 和 Krause 等^[36] 提出了简化的单电子 (single-active-electron, SAE) 模型理论, 极大地减少了计算量, 可以基于 TDSE 更精确地模拟强激光场与原子分子相互作用产生的非线性光学现象. 对于多电子体系, 以最简单的两电子 He 原子为例, 完全求解 TDSE 需要在超级计算机上进行, 很难实现. 1984 年, Runge 和 Gross^[37] 发展了含时密度泛函理论, 用含时的电子密度代替含时电子波函数, 体系的维数不再随电子数目增加, 大大减少了计算量, 使得处理强激光场中复杂多电子体系的模拟成为可能.

当前, 高次谐波的产生研究主要集中在两个方面: 一是增强高次谐波的发射效率; 二是扩展高次谐波的平台. 高次谐波的发射效率受电子复合概率和空间传播相位匹配等因素的影响^[38]. 高次谐波平台截止频率正比于 $I\lambda^2$, 其中 I 代表激光场强度, λ 代表激光场波长. 通过增加驱动激光场的强度, 可以增加电子电离概率, 实现电子复合概率的增

加, 也可以达到扩展高次谐波平台的目的. 1997 年, Spielmann 等^[39] 和 Chang 等^[40] 利用钛蓝宝石激光器产生中心波长为 800 nm 的短波长高强度激光, 并驱动 He 原子产生了接近 500 eV 的高次谐波谱. 相比其他中性稀有气体原子, He 原子的饱和强度最高, 可承受的激光强度最高, 但是 He 原子产生的高次谐波效率比其他气体原子低几个数量级^[41]. 由于受限于电子电离饱和效应, 不可能无限制地增加驱动激光的强度来扩展谐波平台, 因此增加驱动激光的波长就成为另一个必然的选择^[42-53]. 虽然利用长波长驱动可以增大谐波截止频率, 但是会出现谐波效率降低的问题. 已有研究表明^[54], 谐波效率受波长影响, 转换效率以波长标定为 $\lambda^{-5.5 \pm 0.5}$. 为了克服这些困难, 人们提出了多色组合激光场^[55-72] 驱动原子分子的方案, 目的是获得兼具高发射效率和超宽平台的谐波辐射. 实验研究方面, Shelton 等^[73] 通过控制两路同步飞秒激光产生了短阿秒脉冲; Hassan 等^[74] 和 Wirth 等^[75] 利用飞秒钛宝石激光多路参量放大的方案, 开展了三路飞秒激光相干合成的实验研究; Hassan 等^[76] 进一步采用四路可见光波段的飞秒激光调控合成激光的电场波形得到了 380 as 脉冲. 理论研究方面, Takahashi 等^[59] 通过混合多周期双色激光场产生连续高次谐波谱, 获得强的单个阿秒脉冲. Feng 和 Chu^[77] 通过控制三个激光场的激光参数, 研究了 He 原子在三色场中产生超短阿秒脉冲的最佳条件, 表明通过合成两色或三色组合激光场, 优化激光场波形, 不仅可以增加谐波的截止频率, 还可以在不增加激光总功率的情况下增强谐波强度到两个数量级, 从而产生更强更短的单个阿秒脉冲.

实际上, 理论模拟高次谐波及阿秒脉冲的产生还需考虑宏观介质演化效应的影响, 求解宏观介质演化效应需结合含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 计算工作量巨大. Jin 等^[78] 基于强场近似的重散射模型 (quantitative rescattering theory, QRS) 结合麦克斯韦方程求解两色和三色组合激光场, 研究了宏观相位匹配效应对 Ne 原子气体产生高次谐波的影响, 该方法计算量相对较小, 还可以解释大部分实验现象. 为了更精确描述强激光场驱动原子分子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 更深层次理解背后的物理机制, 同时求解了含时薛定谔方程和麦克斯韦方程^[79-82], 首次将非约束优化算法 (NEW unconstrained optimization algorithm, NEWUOA)^[83]

和含时薛定谔方程相结合,以扩展谐波平台最宽为目的构造目标函数,分别优化双色和三色组合激光场,并驱动 He 原子产生超宽平台高次谐波及单个阿秒脉冲,同时基于求解麦克斯韦方程考虑了宏观演化效应的影响. 研究表明,尽管宏观演化效应对单原子层次获得的阿秒脉冲产生影响,但利用远场轴外量子轨道的空间选择性可以获得更短的单个阿秒脉冲,本文的研究为实验上产生单个超短阿秒脉冲提供了一种实际可行的新思路.

2 理论方法

在偶极近似和长度规范下,强激光场中原子的含时薛定谔方程为(原子单位):

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{r},t)=H\psi(\mathbf{r},t)=[H_0+U(\mathbf{r},t)]\psi(\mathbf{r},t), \quad (1)$$

其中, H_0 表示无外场时原子的哈密顿量, $U(\mathbf{r},t)$ 表示原子与激光场的相互作用项,分别表示如下:

$$H_0 = -\frac{1}{2}\nabla^2 + |Y_l^0\rangle V_l \langle Y_l^0|, \quad (2)$$

$$U(\mathbf{r},t) = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r} = -E_0 z f(t) \cos(\omega_0 t + \phi), \quad (3)$$

式中, V_l 是 He 原子模型势, Y_l^0 是球谐函数, $f(t)$ 是激光场包络, E_0 是激光场电场振幅, ω_0 是激光场频率, ϕ 是相位. 为了精确计算 He 原子的谐波谱,构造了角动量依赖的模型势^[84],表示如下:

$$V_l = -\frac{\alpha}{2r^4} W_n\left(\frac{r}{r_c}\right) - \frac{1}{r} - \left(\frac{N-S}{r} + A_1\right) e^{-B_1 r} - (S/r + A_2) e^{-B_2 r}, \quad (4)$$

式中, α 是 He⁺ 偶极极化率; r_c 为有效核半径; $N=1$; S, A_1, B_1, A_2, B_2 分别为常数, W_n 为截断函数,表示如下:

$$W_n(x) = 1 - \left[1 + nx + \frac{(nx)^2}{2!} + \dots + \frac{(nx)^n}{n!}\right] e^{-nx}. \quad (5)$$

表 1 给出了 He 原子角动量依赖模型势的具体参数.

表 1 He 原子模型势参数(原子单位制)^[65]
Table 1. Model potential parameters for He (in a.u.)^[65].

l	α	r_c	S	A_1	A_2	B_1	B_2
0	0.28125	2.0	-7.9093912	-10.899664	0	1.7	3.8
1	0.28125	2.0	1.50094970	0.11297684	0	1.3	3.8
2	0.28125	2.0	0.88294766	-0.032043029	0	1.3	3.8
3	0.28125	2.0	0.41193110	-0.129391180	0	1.3	3.8
≥ 3	0.28125	2.0	0	0	0	1.3	0

利用伪谱法 (generalized pseudospectral method, GPS)^[83] 精确数值求解了含时薛定谔方程 (1). 伪谱法数值求解有两方面优点: 首先,伪谱法在空间采用非均匀离散,在核附近离散取点较密,而离核较远取点较稀疏,与传统的等间距网格离散方法相比,不但计算精度高,而且计算效率也成倍提高;其次,伪谱法把空间径向坐标从 $(0, r_{\max}]$ 转换到 $[-1, 1]$, 有效地解决了库仑奇点的问题.

采用分裂算符方法处理含时演化问题,含时演化波函数表示如下:

$$\begin{aligned} & \psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) \\ &= \exp\left(-iH_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \exp\left[-iU\left(\mathbf{r}, t + \frac{\Delta t}{2}\right) \Delta t\right] \\ & \times \exp\left(-iH_0 \frac{\Delta t}{2}\right) \psi(\mathbf{r}, t) + O(\Delta t)^3. \end{aligned} \quad (6)$$

一旦得到随时间变化的波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$, 就可以计算加速度形式下诱导偶极矩的期望值:

$$\begin{aligned} d_A(t) &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) \left| \frac{d^2 z}{dt^2} \right| \psi(\mathbf{r}, t) \rangle \\ &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) \left| -\frac{\partial U(r)}{\partial r} + E(t) \right| \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \end{aligned} \quad (7)$$

通过对加速度形式诱导偶极矩做傅里叶变换,可以得到单原子层次的高次谐波谱:

$$P_A(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (8)$$

宏观介质中的传播效应需要同时考虑激光场和谐波场的演化,由麦克斯韦方程描述. 对于激光场的演化,三维的麦克斯韦方程表示如下:

$$\begin{aligned} & \nabla^2 E_l(r', z', t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_l(r', z', t)}{\partial t^2} \\ &= \mu_0 \frac{\partial J_{\text{abs}}(r', z', t)}{\partial t} \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 - \eta_{\text{eff}}^2) E_l(r', z', t), \end{aligned} \quad (9)$$

式中, $E_l(r', z', t)$ 是激光脉冲的电场分量, $J_{\text{abs}}(t)$ 是由于介质的电离作用而引起的吸收项, η_{eff} 是气体

的有效折射率, $J_{\text{abs}}(t)$ 和 η_{eff} 分别表示为

$$J_{\text{abs}}(t) = \frac{\gamma(t)n_e(t)I_p E_l(t)}{|E_l(t)|^2}, \quad (10)$$

$$\eta_{\text{eff}}(r', z', t) = \eta_0(r', z', t) + \eta_2 I(r', z', t) - \frac{\omega_p^2(r', z', t)}{2\omega_0^2}, \quad (11)$$

其中, $\gamma(t)$ 是电离率, I_p 是电离势, η_0 是考虑中性原子的折射和吸收效应, η_2 描述的是依赖瞬时激光强度 $I(t)$ 的非线性光学克尔效应, ω_p 为等离子体频率, 可以通过自由电子密度 $n_e(r', z', t)$ 来计算, 表示为

$$\omega_p(r', z', t) = \left[\frac{e^2 n_e(r', z', t)}{\epsilon_0 m_e} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (12)$$

在圆柱坐标中, r' 是径向距离, z' 是轴向传播距离.

对于谐波场演化, 三维的麦克斯韦方程表示如下:

$$\nabla^2 E_h(r', z', t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r', z', t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 D(r', z', t)}{\partial t^2}, \quad (13)$$

其中, 极化场 $D(r', z', t)$ 可以分为线性分量 $D_l(r', z', t)$ 和非线性分量 $D_{\text{nl}}(r', z', t)$. 线性分量包括高次谐波的色散和吸收效应, 非线性分量和介质有关. 在本文的计算中, 气体压强较低, 色散和吸收效应贡献很小^[85], 所以线性分量可以忽略. 非线性分量 $D_{\text{nl}}(r', z', t)$ 可以表示为

$$D_{\text{nl}}(r', z', t) = [n_0 - n_e(r', z', t)]d_A(r', z', t), \quad (14)$$

其中, n_0 是中性原子密度, $d_A(r', z', t)$ 是单原子加速度形式偶极矩. 三维的麦克斯韦方程(9)和方程(13)在频域空间通过Crank-Nicolson方法数值求解, 获得宏观高次谐波谱, 表示如下:

$$P_M(\omega) \propto \int_0^\infty 2\pi r' dr' |E_h(r', \omega)|^2. \quad (15)$$

相应的阿秒脉冲强度由下式得出:

$$I(t) = \int_0^\infty 2\pi r' dr' \left| \int_{\omega_1}^{\omega_2} E_h(r', \omega) e^{i\omega t} d\omega \right|^2. \quad (16)$$

为了更好地分析高次谐波谱的发射特性, 利用小波变换^[86]对时间域谐波谱 $E_h(t')$ 进行时频分析,

$$A(t, \omega) = \int E_h(t') \sqrt{\omega} W[\omega(t' - t)] dt', \quad (17)$$

式中, $W[\omega(t' - t)]$ 是Morlet小波变换的窗函数:

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-\frac{x^2}{2\tau^2}}. \quad (18)$$

3 结果与讨论

3.1 双色组合激光场优化及其驱动原子产生高次谐波和单个阿秒脉冲

首先利用NEWUOA算法, 基于优化控制理论(optimal control theory, OCT)对双色组合激光场进行优化. 优化过程中, 固定第一色激光场波长和强度以及第二色激光场强度, 优化第二色激光场波长和两束激光场之间的延迟时间, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 表示如下:

$$F = \text{Max}\{J[\lambda_2, t_d]\}, \quad (19)$$

其中,

$$J[\lambda_2, t_d] = \int_{\omega_L}^{\omega_H} \log_{10} P_A(\omega) d\omega. \quad (20)$$

式中, ω_L 和 ω_H 分别是优化目标函数对应积分频率的下限和上限.

计算中采用的双色组合激光场为

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t), \quad (21)$$

其中, $E_1(t)$ 为第一色激光场, $E_2(t)$ 为第二色激光场, 分别表示如下:

$$E_1(t) = A_1 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t}{\tau_1}\right)^2} \cos(\omega_1 t), \quad (22)$$

$$E_2(t) = A_2 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-t_d}{\tau_2}\right)^2} \cos[\omega_2(t-t_d)], \quad (23)$$

式中, A_1, A_2 分别为双束激光场的电场振幅; ω_1, ω_2 分别为两束脉冲的角频率; τ_1, τ_2 为两束脉冲的持续时间; t_d 为两束脉冲间的延迟时间.

图1(a)给出了优化前和优化后的双色组合激光场. 初始激光场波长分别设定为800 nm和400 nm, 强度分别设定为 3.0×10^{14} W/cm²和 0.8×10^{14} W/cm², 半高全宽均为8 fs的高斯包络激光脉冲. 数值求解含时薛定谔方程的过程中, 结合NEWUOA算法, 以构造的目标函数优化迭代计算, 优化得到第二色激光场波长为2754.9 nm, 两束脉冲之间的延迟时间为 $0.022T_1$ ($T_1 = 2\pi/\omega_1$). 可以看出优化后的激光场波形相比优化前变化很大. 图1(b)给出了相应的利用优化前和优化后的双色组合激光场驱动He原子产生的高次谐波谱. 优化后的谐波平台相比优化前扩展了130多阶, 谐波

从 70 阶到截止位置附近变得光滑连续, 即优化后的激光场驱动 He 原子产生了超连续平台, 但是谐波强度有所下降, 这是因为优化后的组合激光场有效波长增大. 事实上, 谐波转换效率降低这一不利因素可以通过宏观相位匹配来增强^[87].

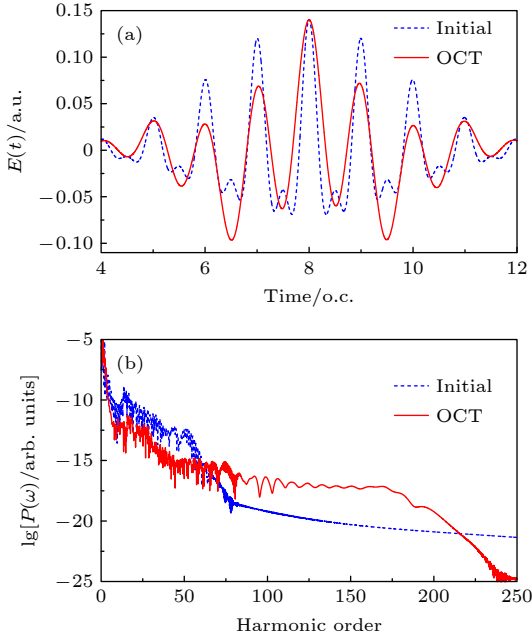


图 1 (a) 优化前和优化后的双色组合激光场; (b) 优化前和优化后的双色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱
Fig. 1. (a) Initial laser field and the optimized two-color laser field; (b) corresponding HHG power spectra.

为了进一步理解谐波的发射特性, 利用小波变换对优化前和优化后的高次谐波谱进行了时频分析. 图 2(a) 为优化前高次谐波谱的小波时频分析结果, 很明显谐波的发射是周期性变化的, 在 70 阶左右发射效率迅速降低, 这与图 1(b) 对应的谐波截止位置符合. 在一个光学周期内, 谐波的发射主要是由长轨道电子和短轨道电子贡献产生. 根据半经典“三步模型”, 长轨道电子为先电离后返回, 短轨道电子为后电离先返回. 图 2(b) 为优化后高次谐波谱的小波时频分析结果, 对比图 2(a) 可以看出, 谐波平台得到了极大的扩展, 优化后的谐波在 180 阶之后效率迅速降低, 与图 1(b) 对应的谐波截止位置一致, 另外, 谐波的发射时间主要集中在 8.25 光学周期, 短轨道电子贡献被抑制, 长轨道电子贡献增强, 这种一个量子轨道被抑制, 另外一个量子轨道被增强的现象有利于超连续结构的产生.

为了进一步阐明长轨道电子和短轨道电子对每一阶次谐波发射的贡献, 图 3(a) 给出了从 70 阶

到 170 阶给定阶次谐波发射强度随时间的变化, 在 8.0 光学周期附近谐波的发射被抑制, 而在 8.2 到 8.3 光学周期发射比较集中, 几乎是同时的, 这与图 2(b) 中短轨道电子贡献被抑制, 长轨道电子贡献被增强是一致的. 已有的研究表明^[88],

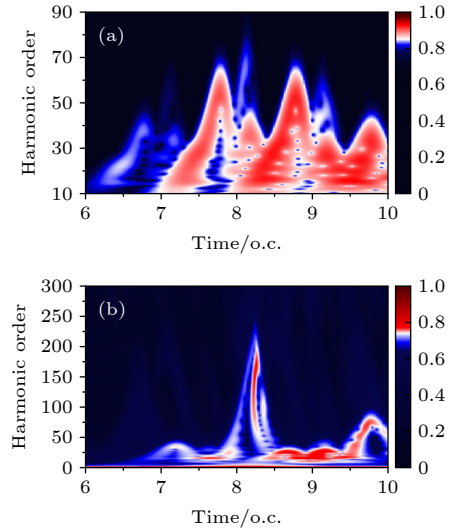


图 2 (a) 优化前高次谐波时频分析图; (b) 优化后高次谐波时频分析图

Fig. 2. Wavelet time-frequency of the HHG spectra for the cases of (a) initial and (b) optimized two-color laser fields.

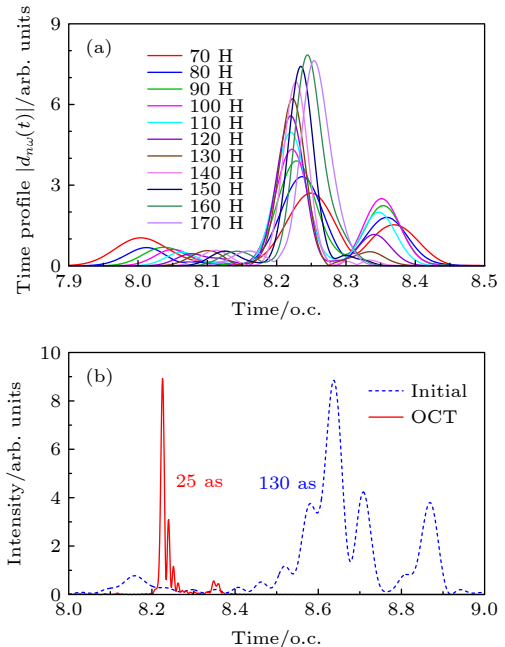


图 3 (a) 优化后给定阶次高次谐波强度随时间变化关系; (b) 对比优化前后单个阿秒脉冲的产生

Fig. 3. (a) Dipole time profiles of harmonics from the 70th to the 170th harmonic order; (b) attosecond pulse generation for the cases of the initial and optimized two-color laser fields.

如果谐波发射相位是锁定的, 就具有超连续平台结构, 叠加这些谐波可以产生更强更短的阿秒脉冲. 为了证实我们的判断, 我们叠加了 70 阶到 170 阶的谐波谱, 获得了能带宽度为 155 eV 的 25 as 单个阿秒脉冲, 如图 3(b) 所示. 为了方便比较优化前与优化后合成的阿秒脉冲, 图 3(b) 中优化后的阿秒在强度上乘了 7 倍, 与优化前获得的最短单个阿秒脉冲相比, 单个阿秒脉冲形状经过优化更加规则光滑, 同时阿秒脉宽从 130 as 缩短到了 25 as.

3.2 三色组合激光场优化及其驱动原子产生高次谐波和单个阿秒脉冲

为了得到更短的单个阿秒脉冲, 接下来利用 NEWUOA 算法对三色组合激光场进行优化. 计算中, 固定三色激光场波长和强度, 优化第一色激光场与第二色激光场之间的延迟时间和第一色激光场与第三色激光场之间的延迟时间, 以扩展谐波平台最宽为目标函数, 构造目标函数如下:

$$F = \text{Max}\{J[t_{d2}, t_{d3}]\}, \quad (24)$$

其中,

$$J[t_{d2}, t_{d3}] = \int_{\omega_L}^{\omega_H} \log_{10} P_A(\omega) d\omega, \quad (25)$$

式中, ω_L 和 ω_H 分别是优化目标函数对应积分频率的下限和上限.

利用三色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 计算中采用的三色组合激光场为

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t) + E_3(t), \quad (26)$$

其中, 三束激光场分别对应为 $E_1(t)$, $E_2(t)$ 和 $E_3(t)$, 表达式为

$$E_1(t) = A_1 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t}{\tau_1}\right)^2} \cos(\omega_1 t), \quad (27)$$

$$E_2(t) = A_2 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-t_{d2}}{\tau_2}\right)^2} \cos[\omega_2(t-t_{d2})], \quad (28)$$

$$E_3(t) = A_3 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-t_{d3}}{\tau_3}\right)^2} \cos[\omega_3(t-t_{d3})], \quad (29)$$

式中, A_1 , A_2 , A_3 分别为三束激光场的电场振幅; ω_1 , ω_2 , ω_3 分别为三束脉冲的角频率; τ_1 , τ_2 , τ_3 分别为三束脉冲的持续时间; t_{d2} , t_{d3} 分别为第一束脉冲与第二束脉冲间的延迟时间, 第一束脉冲与第三束脉冲间的延迟时间.

图 4(a) 给出的是优化前和优化后的三色组合

激光场. 初始激光场波长分别为 800, 2400 nm 和 1600 nm, 对应强度分别为 $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_3 = 0.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 半高全宽均为 15 fs 的高斯包络激光脉冲. 数值求解含时薛定谔方程的过程中, 结合 NEWUOA 算法, 以构造的目标函数优化迭代计算, 优化得到第一色激光场与第二色激光场之间的延迟时间为 $-0.2308T_1$ ($T_1 = 2\pi/\omega_1$), 第一色激光场与第三色激光场之间的延迟时间为 $-0.2764T_1$. 对比优化前后的三色组合激光场, 激光场峰值强度基本没有改变, 但是激光场波形被改变, 这种变化使得组合激光场有效波长增大, 有利于扩展高次谐波平台. 图 4(b) 给出了相应的优化前和优化后三色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱, 优化前的高次谐波谱有三个平台, 第一个平台在 150 阶左右截止, 第二个平台在 220 阶左右截止, 第三个平台在 260 阶左右截止, 即最大截止位置. 优化后的谐波谱平台减少为两个, 130 阶之前为第一平台, 130—290 阶为第二平台区, 而且第二个平台区变得相对规则光滑, 谐波效率也有所增强. 另一个明显的变化是优化后谐波的第一平台截止位置相对优化前的情况向低阶谐波移动了 20 阶左右, 为获得更宽谐波平台创造了条件. 最终优化后有效谐波平台比优化前扩展了 80 阶左右.

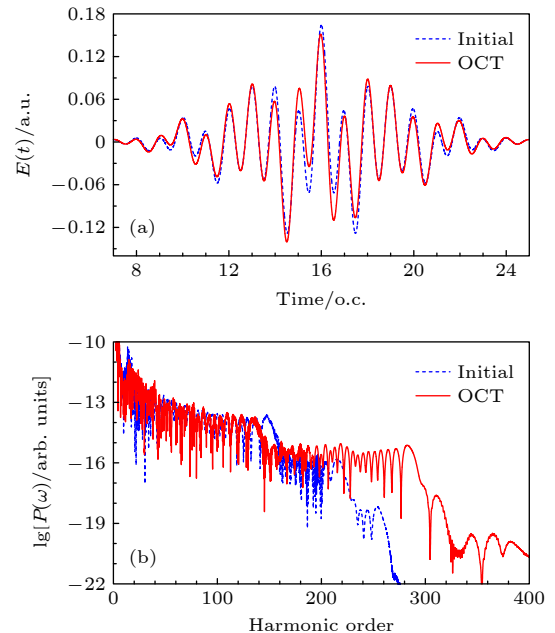


图 4 (a) 优化前和优化后的三色组合激光场; (b) 优化前和优化后的三色组合激光场驱动 He 原子产生的高次谐波谱
Fig. 4. (a) Initial laser field and the optimized three-color laser field; (b) corresponding HHG power spectra.

如图 5(a) 利用小波变换对优化前三色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波谱进行了时频分析, 优化前高次谐波谱的发射主要由 4 部分组成, 分别位于 14.7, 16.3, 17.7 和 19.3 光学周期, 对应的最大阶次分别为 150 阶、260 阶、210 阶和 75 阶. 其中, 平台最大峰值和次最大峰值发射都比较强, 对最小峰值 75 阶次以下谐波发射都有强烈的贡献, 导致截止峰值 75 阶次在图 4(b) 中并不明显. 实际上, 在图 5(b) 中优化后高次谐波谱的发射也主要由四部分组成, 但主要的贡献来自于 16.3 和 17.7 光学周期的发射, 对应的截止峰值分别为 130 阶次和 290 阶次, 与图 4(b) 结果一致. 特别需要指出的是, 在 16.15 光学周期处出现了一个非常集中的发射区域, 即从 130 阶到 280 阶谐波的发射几乎是同时的. 对比优化前后的时频分析结果, 发现长轨道电子贡献增强, 短轨道电子贡献被抑制, 这有利于单个阿秒脉冲的产生.

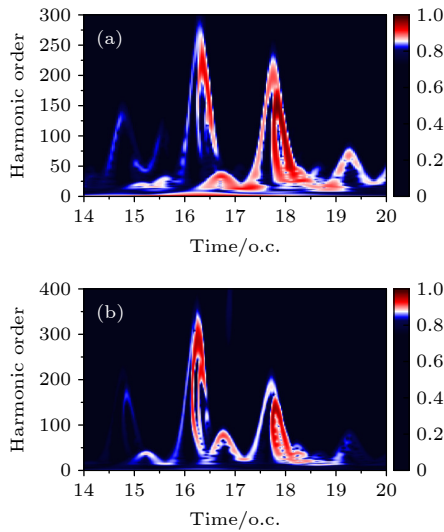


图 5 (a) 优化前高次谐波时频分析图; (b) 优化后高次谐波时频分析图
Fig. 5. Wavelet time-frequency of the HHG spectra for the cases of (a) initial and (b) optimized three-color laser fields.

图 6(a) 给出了 110—200 阶给定谐波阶次发射强度随时间变化的结果. 谐波发射主要集中在 16.1—16.2 光学周期 (o.c.), 这些阶次谐波的发射几乎是同时的, 有利于单个阿秒脉冲的生成. 图 6(b) 中叠加了 110—280 阶的谐波谱, 获得了能带宽度为 260 eV 的 17 as 单个阿秒脉冲, 相比优化前 90 eV 的 29 as 单个阿秒脉冲, 通过优化获得了小于一个原子单位时间 (24 as) 的单个阿秒脉冲.

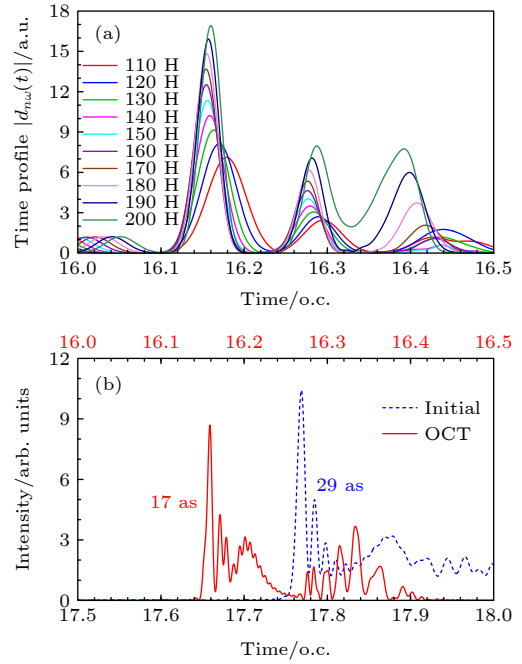


图 6 (a) 优化后给定阶次高次谐波强度随时间变化关系; (b) 优化前后单个阿秒脉冲的产生

Fig. 6. (a) Dipole time profiles of harmonics from the 110th to the 200th harmonic order; (b) attosecond pulse generation for the cases of the initial and optimized three-color laser fields.

3.3 介质演化效应对产生高次谐波和阿秒脉冲的影响

以上讨论了单原子层次双色和三色组合激光场优化及其驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲, 表明优化的双色和三色组合激光场驱动 He 原子可以得到更宽的谐波平台和更短的单个阿秒脉冲. 事实上, 实验中激光场振幅在空间有一定的分布, 成千上万个原子 (分子) 在激光场中感受到的光强是不一样的, 并且发出的高次谐波辐射在空间受到介质演化效应的影响. 接下来讨论介质演化效应对产生高次谐波和阿秒脉冲的影响. 为了最大程度上减小宏观介质演化效应对单原子层次优化激光场波形的影响, 选取了较低的气体压强和束缚较松的激光脉冲束腰. 以优化的双色组合激光场驱动 He 原子产生高次谐波及单个阿秒脉冲为例, 结合激光场中含时薛定谔方程和介质演化效应的麦克斯韦方程, 讨论宏观介质演化效应对产生高次谐波和单个阿秒脉冲的影响. 宏观介质演化效应需要同时考虑激光场的演化和谐波场的演化. 计算中, 激光聚焦强度、中心波长、以及脉宽等参数与单原子优化后双色组合激光场情况一致. 空间依赖

的双色组合激光场表达式如下:

$$E(r', z', t) = \text{Re}\{E_1(r', z')f_1(r', z', t)e^{-i(\omega_1 t + \phi_1)} + E_2(r', z')f_2(r', z', t - t_d)e^{-i[\omega_2(t - t_d) + \phi_2]}\}, \quad (30)$$

其中, $E_1(r', z')$ 和 $E_2(r', z')$ 表示空间依赖的第一束和第二束激光场电场分量, $f_1(r', z', t)$ 和 $f_2(r', z', t - t_d)$ 分别表示两束激光场的高斯激光包络, ω_1 和 ω_2 是对应的双色激光场的频率, ϕ_1 和 ϕ_2 是相位, t_d 是两束激光脉冲间的延迟时间, 两束激光的聚焦强度分别为 $I_1 = 3.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_2 = 0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 两束激光脉冲聚焦处束腰均为 $50 \mu\text{m}$, He 原子气体靶位于激光聚焦位置处, 气体长度为 0.5 mm , 气体压强为 30 Torr ($1 \text{ Torr} \approx 133.322 \text{ Pa}$).

图 7 (a) 是优化后双色组合激光场进入气体靶前的空间分布, 图 7(b) 是相应演化后的激光场空间分布. 很明显激光场场强在空间不同位置强度是不同的. 为了更清楚地展示激光场演化前后的区别, 图 7(c) 给出了演化前与演化后的轴上激光场对比, 在峰值处, 演化前后强度有所不同. 为了参考, 图 7(d) 比较了单原子层次优化后的双色组合

激光场和宏观演化后轴上激光场, 因为计算过程中采用的气体压强较小, 激光脉冲束腰较松, 所以在峰值位置处强度的差别很小, 但是对比仍可以发现介质演化效应对激光场波形存在一定影响.

图 8(a) 是双色优化后组合激光场考虑介质宏观演化效应的高次谐波空间分布, 计算中设置在激光聚焦位置后 30 cm 的远场处收集谐波. 从图中可以看出, 谐波的空间分布是不均匀的, 在轴上的分布比较强, 远离轴的分布比较弱. 轴上 $100\text{--}190$ 阶出现了超连续空间分布结构, 与单原子情况相符合. 图 8(b) 给出的是远场谐波对空间求和的结果, 为了比较列出了单原子结果, 单原子谐波谱在强度上抬高了 12 个量级. 比较而言, 宏观谐波谱更加光滑规则, 超连续平台向较低谐波区域移动. 图 8(c) 给出了叠加谐波谱从 60 阶到 200 阶得到的阿秒脉冲空间分布. 由于在轴上和轴外谐波的传播距离不同, 导致在轴外的区域阿秒脉冲发射有延迟, 即阿秒脉冲空间分布在轴外有明显向右的移动. 由于轴外各点位置激光强度不同, 谐波截止频率也不一样, 用同样范围的谐波谱叠加获得阿秒脉冲波形会有很大的差异, 但由于量子轨道的空间选择性, 总可以在轴外合适的位置获得单个超短阿秒脉冲.

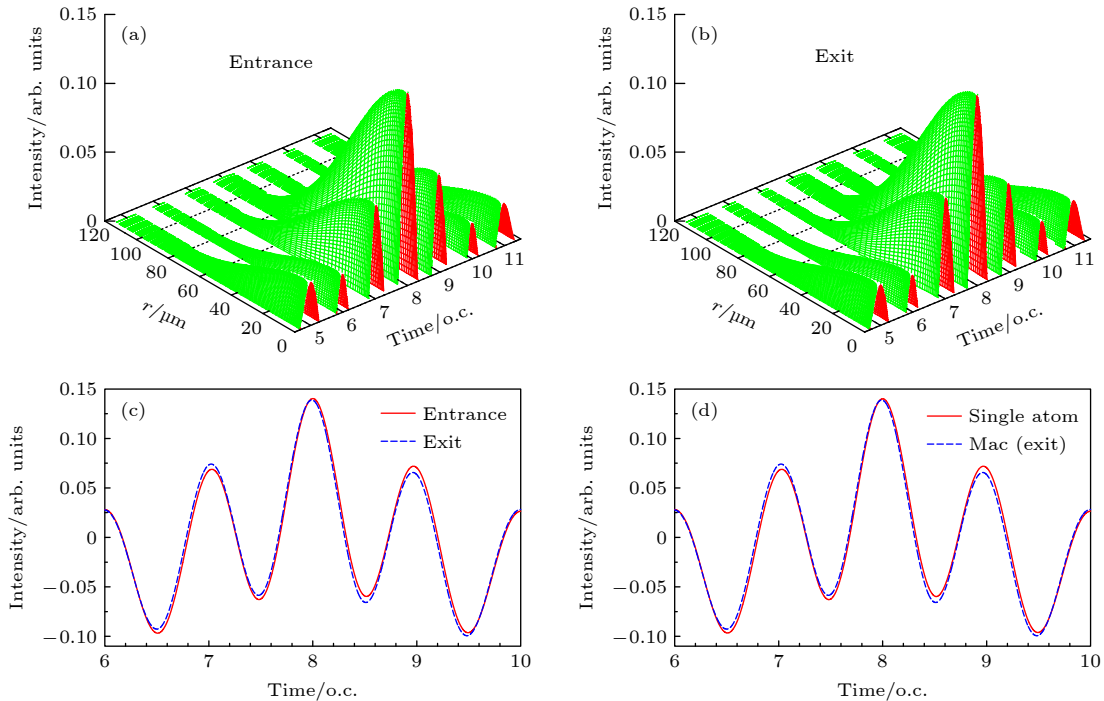


图 7 优化的宏观双色组合激光场空间传播效应 (a) 演化前激光场; (b) 演化后激光场; (c) 轴上演化前和演化后激光场对比; (d) 驱动单原子激光场与宏观演化后轴上激光场对比

Fig. 7. Macroscopic propagation effects of the optimized two-color laser fields: (a) Entrance; (b) exit; (c) comparison of entrance and exit on axis; (d) comparison of the fields for single-atom case and mac-field on axis.

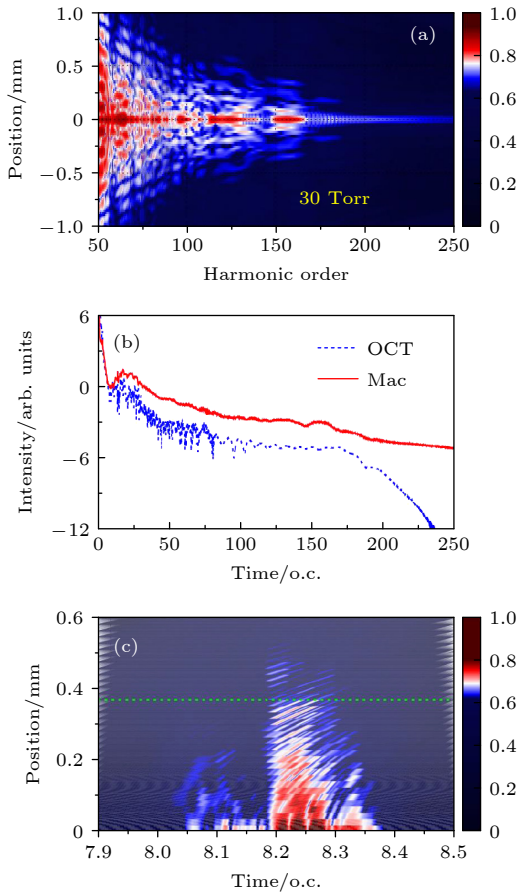


图 8 (a) 远场高次谐波空间分布; (b) 单原子与远场高次谐波对比; (c) 远场阿秒脉冲空间分布
Fig. 8. (a) Spatial distribution of far-field HHG; (b) comparison of single atom and far-field HHG; (c) spatial distribution of far-field attosecond pulse.

图 9(a) 和图 9(b) 给出的是远场轴上和轴外 0.37 mm 处 (图 8(c) 中绿点线所示) 的高次谐波时频分析. 对于轴上的情况, 发射主要集中在 8.2 到 8.3 光学周期, 与单原子情况一致, 也就意味着在本文采用的激光场和靶结构参数下, 介质演化效应对轴上谐波影响不大. 对于轴外情况, 不同空间位置长轨道电子和短轨道电子的贡献是不一样的, 离轴越远, 长轨道电子贡献越强, 短轨道电子贡献越弱, 谐波发射的同步性越好, 有利于产生更短的单阿秒脉冲. 如图 9(c) 所示, 叠加轴上第 66—191 阶谐波得到了 28 as 的单阿秒脉冲, 与单原子结果相差不大, 而轴外 0.37 mm 处叠加第 65—200 阶谐波得到最短为 18 as 的单阿秒脉冲. 为了方便比较, 轴外单个阿秒脉冲强度乘了 300 倍. 结果表明, 利用量子轨道的空间选择性, 可以在轴外获得更短的单超短阿秒脉冲.

最后, 为了检验原子气体靶的位置对高次谐波

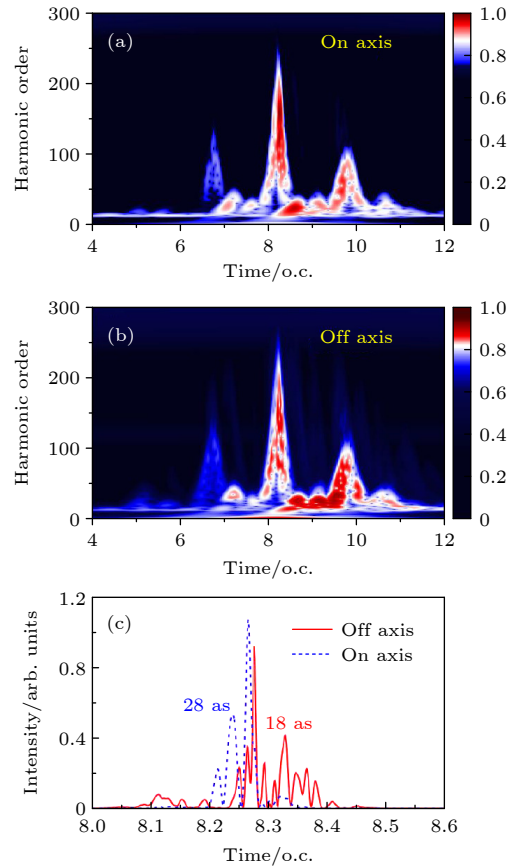


图 9 (a) 轴上高次谐波时频分析; (b) 轴外 0.37 mm 处高次谐波时频分析; (c) 轴上与轴外 0.37 mm 处获得的单个最短阿秒脉冲

Fig. 9. (a) Wavelet time-frequency of the HHG spectra on axis; (b) wavelet time-frequency of the HHG spectra at 0.37 mm off axis; (c) on-axis and off-axis attosecond pulse generation.

超连续谱的影响, 将 He 原子气体靶分别放置在激光聚焦位置前和激光聚焦位置后 2 mm 处, 其他参数与图 7 的情况完全一致, 计算了相应的轴上单个阿秒脉冲的产生, 如图 10 所示. 激光聚焦位置前 (-2 mm)、激光聚焦位置处 (0 mm) 和激光聚焦位

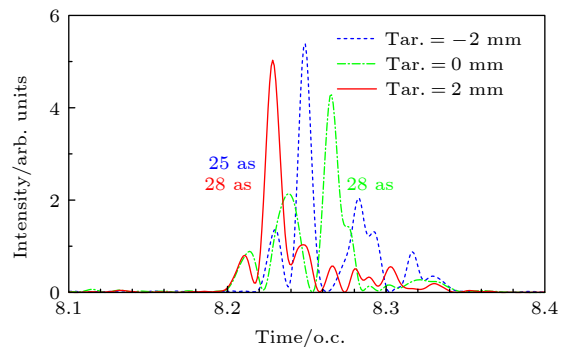


图 10 轴上不同气体靶位置产生的单个阿秒脉冲对比
Fig. 10. Comparison of single attosecond pulse for the different target position.

置后 (2 mm) 分别在轴上得到了最短 25 as, 28 as, 28 as 的单个阿秒脉冲, 阿秒结果相差不大, 但激光聚焦位置之后的单个阿秒脉冲更加规则光滑, 因为气体靶放置在激光聚焦位置之后高次谐波相位匹配更好, 这一结论与实验结果一致^[89].

4 总结与展望

利用优化组合激光场驱动原子分子在强激光场中发射的高次谐波是合成超短阿秒脉冲的主要方案之一, 高次谐波及阿秒脉冲的产生是强场超快过程的前沿研究领域, 涌现出了许多重要研究成果, 限于篇幅, 不能一一提及. 本文仅从理论方面研究了利用优化组合双色和三色激光场驱动原子发射的高次谐波及合成单个超短阿秒脉冲的最优方案, 并展示了研究结果. 将含时薛定谔方程和 NEWUOA 优化算法相结合, 通过优化激光场波形, 极大地增加了谐波的截止频率, 对于双色和三色激光场优化及其驱动 He 原子分别获得了最短 25 as 和 17 as 的单个阿秒脉冲. 同时以双色激光场优化为例, 基于同时求解含时薛定谔方程和麦克斯韦方程, 进一步考虑了宏观介质演化效应对高次谐波和阿秒脉冲产生的影响, 发现在远场轴外通过量子通道的空间选择性可以获得更短更规则的单个 18 as 超短阿秒脉冲, 相关研究为实验提供了更精准的理论参考. 随着激光技术的发展, 实验室中已经可以产生任意波形的激光脉冲, 结合优化控制理论, 优化组合激光场驱动原子分子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲具有非常明显的优点, 使获得更短单个阿秒脉冲光源成为可能, 并将成为揭示新物理机制的重要手段.

感谢西北师范大学王志斌博士和陈阳阳硕士的讨论.

参考文献

- [1] Telnov D A, Chu S I 2009 *Phys. Rev. A* **79** 041401
- [2] Garcia Ruiz R F, Vernon A R, Binnersley C L, Sahoo B K, Bissell M, Billowes J, Cocolios T E, Gins W, de Groote R P, Flanagan K T, Koszorus A, Lynch K M, Neyens G, Ricketts C M, Wendt K D A, Wilkins S G, Yang X F 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041005
- [3] Wang R, Zhang Q, Li D, Xu S, Cao P, Zhou Y, Cao W, Lu P 2019 *Opt. Express* **27** 6471
- [4] Ge P, Fang Y, Guo Z, Ma X, Yu X, Han M, Wu C, Gong Q, Liu Y 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 223001
- [5] De Silva A H N C, Atri-Schuller D, Dubey S, Acharya B P, Romans K L, Foster K, Russ O, Compton K, Rischbieter C,

- Douguet N, Bartschat K, Fischer D 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 023201
- [6] Liu M M, Shao Y, Han M, Ge P, Deng Y, Wu C, Gong Q, Liu Y 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 043201
- [7] Li W K, Lei Y, Li X, Yang T, Du M, Jiang Y, Li J L, Luo S Z, Liu A H, He L H, Ma P, Zhang D D, Ding D J 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 053202
- [8] Kelvich S A, Becker W, Goreslavski S P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 023427
- [9] Brennecke S, Lein M 2018 *Phys. Rev. A* **98** 063414
- [10] Brennecke S, Lein M 2018 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51** 094005
- [11] Shi M, Lai X, Yu S, Wang Y, Quan W, Liu X 2022 *Phys. Rev. A* **105** 013118
- [12] Yang Q, Leng J, Wang Y H, Sun Y N, Du H B, Zhang D D, Song L L, He L H, Liu F C 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 023301
- [13] Verhoef A J, Mitrofanov A V, Serebryannikov E E, Kartashov D V, Zheltikov A M, Baltuška A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 163904
- [14] Chen Y, Zhou Y, Tan J, Li M, Cao W, Lu P 2021 *Phys. Rev. A* **104** 043107
- [15] Ni H, Brennecke S, Gao X, He P L, Donsa S, Březinová I, He F, Wu J, Lein M, Tong X M, Burgdörfer J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 073202
- [16] Tan J, Zhou Y, He M, Ke Q, Liang J, Li Y, Li M, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033402
- [17] Luo S, Li M, Xie W, Liu K, Feng Y, Du B, Zhou Y, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 053422
- [18] Zhao Y, Zhou Y, Liang J, Zeng Z, Ke Q, Liu Y, Li M, Lu P 2019 *Opt. Express* **27** 21689
- [19] Douguet N, Bartschat K 2018 *Phys. Rev. A* **97** 013402
- [20] Yoshikawa N, Tamaya T 2017 *Science* **356** 736
- [21] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2011 *Nat. Phys.* **7** 138
- [22] Uchida K, Mattoni G, Yonezawa S, Nakamura F, Maeno Y, Tanaka K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **128** 127401
- [23] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982
- [24] Zhang J, Hua L Q, Chen Zh, Zhu M F, Gong Ch, Liu X J 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 124203
- [25] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [26] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [27] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** 3
- [28] L'Huillier A, Balcou Ph 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [29] Macklin J J, Kmetec J D, Gordon III C L 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [30] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 3315
- [31] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 13
- [32] Kulander K C, Schafer K J, Krause J L 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2601
- [33] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov M Yu, L' Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [34] L'Huillier A, Lewenstein M, Salières P, Balcou Ph, Ivanov M Yu, Larsson J, Wahlström C G 1993 *Phys. Rev. A* **4** 8
- [35] Kulander K C 1988 *Phys. Rev. A* **38** 778
- [36] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. A* **45** 4998
- [37] Runge E, Gross E K U 1984 *Phys. Rev. Lett.* **52** 997
- [38] Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, Zhao K, Teng H, Wang S, Liang Y Y, Wang J, Yu S Y, Chen Y L, Zhu J F 2021 *Chin.*

- J. Lasers* **48** 0501001 (in Chinese) [魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 赵昆, 滕浩, 王帅, 梁玥瑛, 王佶, 喻苏玉, 陈云琳, 朱江峰 2021 *中国激光* **48** 0501001]
- [39] Spielmann C, Burnett N H, Sartania S, Koppitsch R, Schmurder M, Kan C, Lenzner M, Wobrauschek P, Krausz F 1997 *Science* **278** 661
- [40] Chang Z, Rundquist A, Wang H, Murnane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2967
- [41] Tong X M, Chu S I 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013417
- [42] Shan B, Chang Z H 2001 *Phys. Rev. A* **65** 011804(R)
- [43] Baltuska A, Fuji T, Kobayashi T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133901
- [44] Gibson E A, Paul A, Wagner N, Tobey R, Backus S, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 033001
- [45] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdorfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903
- [46] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [47] Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, Wheeler J, Hauri C, Catoire F, Tate J, Chirila R, March A M, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2008 *Nat. Phys.* **4** 386
- [48] Fu Y, Xiong H, Xu H, Yao J, Yu Y, Zeng B, Chu W, Liu X, Chen J, Cheng Y, Xu Z 2009 *Phys. Rev. A* **79** 013802
- [49] Popmintchev T, Chen M Ch, Bahabad A, Gerrity M, Sidorenko P, Cohen O, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **106** 10516
- [50] Shiner A D, Herrero C T, Kajumba N, Bandulet H C, Comtois D, Légaré F, Giguère M, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 073902
- [51] Li J, Ren X M, Yin Y C, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S Y, Wu Y, Chini M, Chang Z H 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [52] Pan Y, Guo F M, Jin C, Yang Y J, Ding D J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033411
- [53] Wang X W, Wang L, Xiao F, Zhang D W, Lü Z H, Yuan J M, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [54] Tate J, Auguste T, Muller H G, Salières P, Agostini P, DiMauro L F 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 013901
- [55] Mauritsson J, Johnsson P, Gustafsson E, L' Huillier A, Schafer K J, Gaarde M B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 013001
- [56] Oishi Y, Kaku M, Suda A, Kannari F, Midorikawa K 2006 *Opt. Express* **14** 7230
- [57] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [58] Li P C, Zhou X X, Wang G L, Zhao Z X 2009 *Phys. Rev. A* **80** 053825
- [59] Takahashi E J, Lan P F, Mücke O D, Nabekawa Y, Midorikawa K 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 233901
- [60] Lan P F, Takahashi E J, Midorikawa K 2010 *Phys. Rev. A* **82** 053413
- [61] Wu J, Zhang G T, Xia C L, Liu X S 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013411
- [62] Brugnera L, Frank F, Hoffmann D J, Torres R, Siegel T, Underwood J G, Springate E, Froud C, Turcu E I C, Tisch J W G, Marangos J P 2010 *Opt. Lett.* **35** 23
- [63] Li P C, Liu I L, Chu S I 2011 *Opt. Express* **19** 23857
- [64] Wang Z, Li Y, Wang S Y, Hong W Y, Zhang Q B, Lu P X 2013 *Phys. Rev. A* **87** 033822
- [65] Li P C, Laughlin C, Chu S I 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023431
- [66] Chou Y, Li P C, Ho T S, Chu S I 2015 *Phys. Rev. A* **91** 063408
- [67] Shao R Z, Zhai C Y, Zhang Y F, He L X, Zhu X S, Lan P F, Lu P X 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 064001
- [68] Chou Y, Li P C, Ho T S, Chu S I 2015 *Phys. Rev. A* **92** 023423
- [69] Jin C, Wang G L, Wei H, Le A T, Lin C D 2014 *Nat. Commun.* **5** 4003
- [70] Liu I L, Li P C, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033414
- [71] Li P C, Chu S I 2012 *Phys. Rev. A* **86** 013411
- [72] Ye X L, Zhou X X, Zhao S F, Li P C 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1579 (in Chinese) [叶小亮, 周效信, 赵松峰, 李鹏程 2009 *物理学报* **58** 1579]
- [73] Shelton R K, Ma L S, Kapteyn H C, Murnane M M, Hall J L, Ye J 2001 *Science* **293** 5533
- [74] Hassan M Th, Grguras I, Moulet A, Luu T T, Gagnon J, Pervak V, Goulielmakis E 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 111301
- [75] Wirth A, Hassan M TH, Grguras I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Pabst S, Santra R, Alahmed Z A, Aeezzr A M, Yakovlev V S, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 6053
- [76] Hassan M Th, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [77] Feng L Q, Chu T S 2011 *Phys. Rev. A* **375** 3641
- [78] Jin C, Hong K H, Lin C D 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013422
- [79] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B* **41** 132001
- [80] Geissler M, Tempea G, Scrinzi A, Schntürer M, Krausz F, Brabec T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 2930
- [81] Tosa V, Kim H T, Kim I J, Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063807
- [82] Jin C, Le A T, Trallero-Herrero C A, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043411
- [83] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [84] Chu X, Chu S I 2001 *Phys. Rev. A* **64** 013406
- [85] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, De Silvestri S, Villoresi P, Poletto L, Ceccherini P, Altucci C, Bruzzese R, de Lisio C 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801
- [86] Tong X M, Chu S I 2000 *Phys. Rev. A* **61** 031401
- [87] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Aliāuskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A, Baltuška A, Shim B, Schrauth S E, Gaeta A, García C H, Plaja L, Becker A, Becker A J, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [88] Carrera J J, Tong X M, Chu S I 2006 *Phys. Rev. A* **74** 023404
- [89] Salières P, Antoine P, de Bohan A, Lewenstein M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 5544

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field*

Han Lin¹⁾²⁾ Miao Shu-Li¹⁾ Li Peng-Cheng^{1)†}

1) (*Research Center for Advanced Optics and Photoelectronics, Department of Physics, College of Science, Shantou University, Shantou 515063, China*)

2) (*Key Laboratory of Theoretical Physics of Gansu Province, Theoretical Physics Center of Lanzhou, School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

(Received 30 June 2022; revised manuscript received 24 August 2022)

Abstract

High-order harmonic generation, which is a hot topic of strong ultrafast fields, is one of the most important ways for obtaining the ultraviolet attosecond sources, and has a very wide application prospect. This work focuses on the challenges of the generation of either short or high attosecond pulses. We present the research progress of the high-order harmonics and attosecond pulse generation, and propose an effective and feasible method, and show some results. Specifically, combining the time-dependent Schrödinger equation and new unconstrained optimization algorithm, the objective function with the aim of the widest supercontinuum plateau of He atom is designed and the optimized two-color and three-color laser fields are obtained. The supercontinuum spectra extend up to 100 harmonic orders for the case of the optimized two-color laser field. As a result, a single ultrashort attosecond pulse of 25 as is produced. For the three-color case, the supercontinuum spectra reach up to 170 harmonic orders, and the width of single shortest attosecond pulse obtained by superposing pulses from low order (110 order) to high order (280 order) is obtained to be 17 as. Taking the optimized two-color laser field for example, the macroscopic medium propagation is discussed by solving the Maxwell equation. The results show that the selectivity of quantum trajectories from far-field space distribution can obtain the single ultra-short attosecond pulse.

Keywords: high-order harmonic generation, attosecond pulse generation, strong laser field, macroscopic media propagation

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Ct, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221298

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 91850209, 12074239, 12047501), the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2020A1515010927), the Science and Technology Project of Guangdong Province, China (Grant No. 2020ST084), the Special Innovation Program of Universities of Guangdong Province (Grant Nos. 2019KTSCX038, 2020KCXTD012), and the Shantou University, China (Grant No. NTF18030).

† Corresponding author. E-mail: pchli@stu.edu.cn



优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究

汉琳 苗淑莉 李鹏程

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field

Han Lin Miao Shu-Li Li Peng-Cheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233204 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221298

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221298>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma
物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field
物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse
物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration
物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation
物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

激光强度依赖的阈下谐波产生机制

Mechanism of laser intensity-dependent below-threshold harmonic generation
物理学报. 2020, 69(7): 074203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191883>

专题: 阿秒物理

驱动激光波长对超短脉冲与原子相互作用产生高次谐波发射的影响*

张頔玉¹⁾²⁾ 蓝文迪¹⁾²⁾ 李雪峰¹⁾²⁾ 张稣稣¹⁾²⁾ 郭福明¹⁾²⁾ 杨玉军^{1)2)†}

1) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

2) (吉林省应用原子与分子光谱重点实验室, 长春 130012)

(2022年4月19日收到; 2022年5月17日收到修改稿)

通过数值求解含时薛定谔方程方案, 理论研究了在有质动力能不变条件下, 不同波长超短激光辐照原子产生的高次谐波发射. 发现随着驱动激光波长的增加, 谐波发射的强度降低且发射谱中出现新的峰值结构. 通过谐波发射行为的时间频率分析, 电子密度的含时演化以及本征态布居含时分析发现, 谐波新的峰值产生根源是电子从激发态电离后返回母体离子产生的谐波发射与从基态电离产生的谐波发射之间的干涉.

关键词: 高次谐波发射, 中红外激光, 阿秒脉冲

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.71.20220743

1 引言

超短强激光与原子、分子和固态物质相互作用可以观察到阈上电离、非序列双电离以及高次谐波发射等非线性物理现象^[1-7]. 高次谐波光谱随着能量的增加呈现出独特的“平台”结构, 能将相干光辐射从红外波段转换为真空紫外乃至软 X 射线波段. 这一特性被应用于产生短波长相干光源^[8,9], 光频率已经达到“水窗 (2.3—4.4 nm)”波段, 这个波段的光源能实现对生物活体过程的分子水平观测^[10-12]. 此外, 谐波光源也可以被应用于纳米尺寸材料的相干成像^[13,14]. 近期, 人们采用双色圆偏振激光方案产生特定阶次的圆偏振谐波, 或是利用椭圆偏振驱动脉冲结合原子共振效应产生近圆偏振谐波^[15,16], 以及利用圆偏振谐波实现磁学和手性分子的研究, 极大地扩展了高次谐波发射的应用范围^[17].

高次谐波更为重要的应用是利用其光谱足够宽的特性来产生桌面型相干阿秒量级的超短光脉

冲^[18-21]. 阿秒尺度的光脉冲可以对电子的超快运动实现调控, 实现高时间分辨的电子动力学过程的探测, 如电子在束缚态运动、电子隧穿电荷转移等^[22-26]. 通常多周期激光脉冲与惰性气体相互作用产生的谐波为多个脉冲组成的阿秒脉冲串, 而对物理过程观测, 通常需要孤立的阿秒脉冲. 为了解决这个问题, 人们提出了利用少周期脉冲与原子相互作用的孤立阿秒脉冲产生方案^[27,28].

为了产生更小时间尺度的阿秒脉冲, 需要更大的谐波频宽. 高次谐波的截止能量可以由公式 $I_p + 3.17U_p$ 给出, 其中 I_p 为原子的电离能, U_p 是激光电场的有质动力能 (正比于激光的光强, 反比于激光频率的平方). 更宽的谐波发射平台可以通过提高驱动光的强度实现. 但是由于原子电子态布居的耗尽效应, 即在较强的光场作用下, 电子的全部束缚态布居都会被电离, 当进一步增加光强时, 不会再产生新的电离电子, 根据三步模型也就没有更高能量电子与离子的复合, 限制了进一步提高谐波的截止能量. 此外, 由于高次谐波发射是多个原子

* 国家重大研究计划 (批准号: 2019YFA0307700) 和国家自然科学基金 (批准号: 12074145, 11627807, 11774129) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

产生谐波的相干过程, 光强过大导致更多自由电子的产生, 破坏谐波相干条件. 因此通过增加驱动激光的波长来提高谐波的截止能量成为人们的选择, 目前获得更短阿秒脉冲的主要方案是利用超短持续时间、波长更长的中红外波段光脉冲与惰性气体原子作用^[29,30].

然而, 由于波包弥散效应, 谐波发射效率随着驱动激光波长的增加呈负指数下降. 这一困难可以通过提高气体靶压力, 增大参与谐波发射的原子数目来克服^[19]. 随着中红外波段光源的技术进展^[31-38], 利用中红外激光与原子作用产生高能量谐波的研究不断推进^[39-43]. 目前, 人们可用 4 μm 的驱动激光与原子相互作用, 观察到的谐波光能量达到 1.6 keV, 极大扩展了高次谐波发射的应用范围^[19]. 目前实验产生的单个阿秒脉冲的强度还无法达到泵浦探测所需的强度, 还需要进一步深入研究波长效应对超短脉冲产生的谐波和阿秒脉冲的影响, 提升谐波的发射效率. 为此, 本文通过数值求解含时薛定谔方程, 研究了超短强激光与原子相互作用的谐波发射, 发现随着驱动激光波长的增加, 激发态对谐波的影响变大, 进而影响阿秒脉冲产生过程 (如无特殊说明, 本文均采用原子单位).

2 理论方法

为了计算激光辐照下原子的高次谐波发射, 需要数值求解体系中电子满足的含时薛定谔方程:

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(x,t) = \left[-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + E_x(t)x + V(x)\right]\psi(x,t), \quad (1)$$

其中势函数为

$$V(x) = -q/\sqrt{x^2 + a}, \quad (2)$$

这里选择的软核参数是 $q = 0.561$ 和 $a = 0.367$, 基态能量为 -0.5 a.u. (对应氢原子第一电离能). 驱动激光电场矢势为 \sin^2 包络形式, 脉冲持续时间为一个光学周期, 改变激光的驱动光强和波长, 保持驱动激光的有质动力能对应的 Keldysh 参数 $\gamma = 0.3$. 体系波函数利用有限元离散变量表象 (FEDVR) 方案离散, 该方案将计算的空间分成 N 个元, 第 i 个元内的函数利用 Lagrange 多项式展开, 元内的空间点的分布满足 Gauss-Lobatto 积分规则. 第 i 个元内的基函数可以表示为

$$f_m^i(x) = \begin{cases} \prod_{j \neq m} \frac{(x - r_j^i)}{(r_m^i - r_j^i)}, & r_i \leq x \leq r_{i+1}, \\ 0, & x < r_i \text{ or } x > r_{i+1}, \end{cases} \quad (3)$$

其中第 i 个元 $[r_i, r_{i+1}]$ 内的第 m 个点 r_m^i 和对应的权重 w_m^i 表示如下:

$$r_m^i = \frac{(r_{i+1} + r_i)x_m + (r_{i+1} - r_i)x_1}{2}, \quad (4)$$

$$w_m^i = \frac{(r_{i+1} - r_i)}{2} w_m. \quad (5)$$

体系的含时波函数演化表示为

$$\psi(t + \Delta t) = e^{-iH(t)\Delta t}\psi(t). \quad (6)$$

利用 Lanczos 方案^[44], 可以实现 (6) 式的准确快速求解. 该方案算法中, 波函数的传播是在 Krylov 子空间中进行的, 这个子空间可以通过在波函数上重复乘以哈密顿量得到. 最终通过含时波函数得到对应偶极矩^[39,40]:

$$a(t) = \langle \psi(x,t) | -\frac{dV(x)}{dx} - E_x(t) | \psi(x,t) \rangle. \quad (7)$$

对偶极矩进行傅里叶变换得到对应谐波:

$$P(\omega) = \left| \frac{1}{\omega^2(t_m - t_0)} \int_{t_0}^{t_m} a(t)e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (8)$$

其中 t_0 和 t_m 分别为激光脉冲的起始时刻和终止时刻. 为了理解谐波产生的机理, 利用小波变换对谐波发射的时间频率行为进行了分析, 同时研究了束缚态和连续态的布居随着时间的改变^[45-49].

3 结果与讨论

首先计算了驱动激光波长为 1000 和 5000 nm 的高次谐波发射谱, 如图 1 所示. 可以看出, 在相同的有质动力能条件下, 谐波发射谱都呈现出平台结构且截止能量都在 3.3 a.u. 附近. 但二者的发射强度相差超过 5 个数量级, 产生这一差别的原因是在有质动力能不变的情况下, 5000 nm 激光光强弱得多, 使得电离电子概率低得多, 且长波长引起的电离波包弥散效应更大, 进而引起谐波强度低很多. 需要注意的是, 除了效率的差别外, 谐波谱还呈现出了诸多此前未被人们注意到的新的细致差别: 由于驱动激光为超短脉冲, 因而不能观察到清晰的奇次谐波发射, 对于 1000 nm 的驱动光场, 可以观察到两条长短发射轨迹的相干谐波发射特征, 而对于 5000 nm 驱动光作用的原子谐波发射

谱, 谐波谱整个平台上均可以观察到更小能量间距的谐波峰. 此外, 在谐波发射谱的低能附近可以观察到一个发射强度很高的峰值, 通过分析发现, 这一峰值的能量为 0.375 a.u., 等于原子第一激发态与基态之间的能差, 这一光发射峰来源于第一激发态向基态的跃迁. 1000 nm 情况下电离率很高, 第一激发态布居与连续态布居相比弱很多, 第一激发态与基态间跃迁产生光发射的强度, 并不会显著强于连续态与束缚态间跃迁发射的光, 所以在谐波谱上并没有表现出显著强于其他频率的光发射峰.

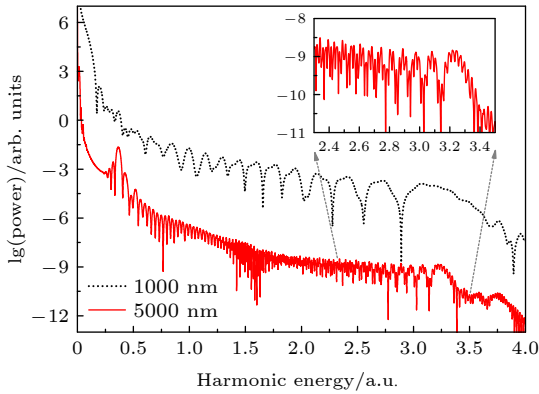


图 1 波长为 1000 nm (黑色点线) 和 5000 nm (红色实线) 的驱动激光与原子作用产生的高次谐波发射
Fig. 1. High-order harmonic generated from an atom irradiated by the driving lasers with wavelengths of 1000 nm (black dotted line) and 5000 nm (red solid line).

为了详细分析波长效应对谐波的影响, 系统研究了相同有质动力能条件下, 驱动激光脉冲作用于原子产生的谐波发射谱的强度随着波长的改变, 如图 2 所示. 可以看出, 随着驱动激光波长的增加, 在谐波发射谱的高能部分 (大于 2 a.u.), 均可以观察到清晰的半个周期内电离电子产生的长短发射轨道

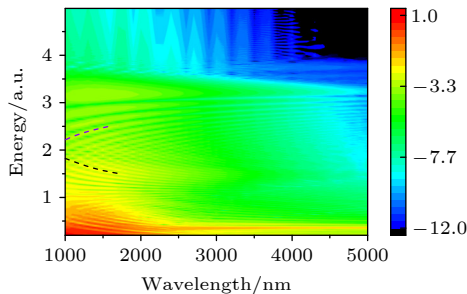


图 2 Keldysh 参数为 0.3, 波长为 1000—5000 nm 的驱动激光与原子作用产生的高次谐波发射随波长的改变
Fig. 2. When the Keldysh parameter is 0.3, the variation of the high-order harmonic radiation intensity with the driving laser wavelength in the 1000–5000 nm range.

之间的干涉结构. 对于较低谐波能量 (1 a.u.), 谐波发射谱的结构更为复杂, 可以观察到清晰的干涉峰. 对于能量小于电离阈值的谐波发射, 在波长较短条件下还可以观察到相对复杂的结构. 但是随着波长的增加, 基态和第一激发态之间跃迁的光发射峰变得更为清晰. 为了理解高次谐波发射随着波长的变化特性, 利用小波变换分析了谐波发射的时间行为.

图 3 给出了驱动激光波长为 1000 nm 的不同能量谐波的发射随着时间的改变. 可以看出, 由于驱动激光脉冲较短, 因而谐波发射谱的时间频率行为也相对简单. 在给出的谐波能量范围内, 可以观察到三条主要的发射轨迹, 发射时间分别在 50 (轨迹 A), 90 (轨迹 B) 和 120 a.u. (轨迹 C) 附近. 第一个谐波发射轨迹 (轨迹 A) 的截止能量较小, 在 1.7 a.u. 附近. 第二条 (短轨迹 B) 和第三条 (长轨迹 C) 谐波发射轨迹相交于 110 a.u. 附近, 这两条发射轨迹对应于前半个周期电离产生的谐波. 图 3 同时给出了利用三步模型计算的回核能量随着时间的改变, 如图中黑色实线和紫色实线所示. 可以看出, 在该激光参数下, 经典计算可以非常好地重现量子计算的结果, 清晰地阐明了谐波产生的机制. 在谐波发射的高能部分, 由于主要有 B 和 C 两条轨迹, 因而可以在谐波发射谱中清晰地观察到长短轨迹的干涉结构. 对于谐波发射谱的低能部分 (1–2 a.u.), 由于第一条谐波发射轨迹 A 发挥重要作用, 因而使得谐波发射谱的结果更为复杂, 干涉产生的谐波峰值间能差更小. 我们注意到图 2 中短波长下存在两组干涉结构, 一部分随着驱动激光波长的增加向谐波的高能区移动, 另一部分向低能区移动, 分别如图 2 中的紫色虚线和黑色虚线所示. 这种演化行为可以通过谐波发射的时频轨迹理解. 谐波谱的干涉亮条纹的能量位置由参与干涉的两条谐波发射轨迹间的相位差决定, 轨迹间的相位差等于谐波能量与两条发射轨迹时间差的乘积. 在图 3 中, 在同一个驱动光波长下, 随着谐波能量的增加, A, B 两个发射轨迹的时间差 (以光学周期为单位) 几乎保持不变. 随着驱动光波长的增加, 在保持 U_p 不变的条件下, 两条发射轨迹的时间差会逐渐增大. 由于相位差等于能量与时间差的乘积, 这两个发射轨迹的相位差逐渐加大. 在同一个亮的干涉条纹上, 为了保证相位差不变, 能量会向低能区移动. 对于 B, C 两个发射轨迹, 随着能量的增加, 两个发射轨迹的时间差快速减小 (大于能量增

加的速率), 这两条发射轨迹的相位差随着谐波能量的增加逐渐减小. 因而随着驱动光波长的增加, 同一个谐波能量对应的两条发射轨迹的相位差会增加. 为了保持同一个亮的干涉条纹上的相位差不变, 能量会向高能区移动.

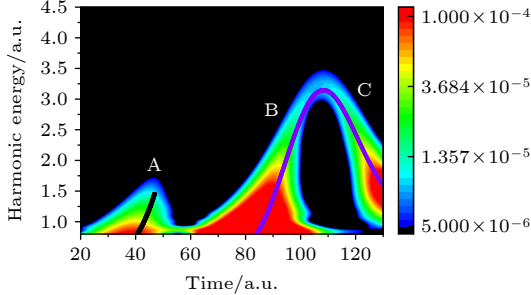


图 3 波长为 1000 nm 的驱动激光与原子作用产生的高次谐波发射的时间行为, 图中黑色和紫色实线为经典三步模型计算的发光能量

Fig. 3. Temporal behavior of high-order harmonic generated by the atom irradiated by the driving laser with a wavelength of 1000 nm, the black and purple line represent the energy calculated by the simple man model.

对于 5000 nm 谐波发射行为, 和 1000 nm 驱动激光作用产生的谐波发射呈现出不同的特征, 如图 4(a) 所示. 可以看出, 由于驱动激光的有质动力能相同, 因而也能观察到与 1000 nm 驱动激光下的谐波发射类似的轨迹, 发射时刻分别为 200 (轨迹 A), 500 (轨迹 B) 和 600 a.u. (轨迹 C) 附近. 三条轨迹对应的谐波能量也与短波长条件一致, 但每条轨迹的相对发射强度有较大差别. 更明显的差别是在时间为 250—300 a.u. 附近存在一个额外的谐波发射轨迹 (轨迹 D), 且这一轨迹与 $t = 200$ a.u. 附近的谐波发射轨迹间存在明显的间断. 由于谐波发射的机制是电离电子回核产生的辐射, 为了理解新的谐波发射轨迹 D 产生的机理, 计算了体系的含时电子密度分布随着时间的改变, 如图 4(b) 所示. 从图中可以清晰地看到, 电子在激光的作用下电离后返回到母体离子, 在 $t = 200$ a.u. 附近产生谐波发射. 此外还可以观察到部分电子波包在更早的时间电离, 在时间为 250—300 a.u. 附近返回母体离子, 产生了新的谐波发射轨迹 D. 为了理解电子的含时密度演化行为, 进一步分析了体系的束缚态布居和连续态布居随时间的变化行为.

图 5(a) 给出了驱动激光波长为 1000 nm 条件下, 体系的激发态概率 (红色点线) 和连续态概率 (黑色实线) 随着时间的改变. 从图 5(a) 可以看出, 在这一波长驱动激光作用下, 体系的激发态布居随

着时间的增加逐步增大, $t = 50$ a.u. 附近达到峰值, 之后逐步减小, 这一变化是由于驱动激光的作用导致电子密度分布逐步远离核区 (电子分布与激发态的重叠逐渐变大后减小). 之后, 由于电离的概率很大, 当在前半个周期电离电子返回母体离子时, 在 $t = 90$ a.u. 附近增加了激发态的布居. 而当驱动激光波长为 5000 nm 时, 体系的布居随时间的改变呈现出完全不同的行为, 如图 5(b) 所示. 在相同的 Keldysh 参数条件下, 更长的驱动激光波长对应更小的驱动激光强度. 电子的电离概率与驱动激光的电场强度呈指数减小, 因而整体的电离减小很多. 而由于驱动激光的作用, 使得体系的含时波函数随激光电场偏离势阱中心, 并与激发态波函数有较大的重叠, 使得激发态产生较大布居, 并且激发态的布居大小随着激光电场的含时变化行为一致. 进而在此种长波长驱动激光作用下激发态布居甚至超越了电离概率. 值得注意的是, 在脉冲的起始阶段 (绿色虚线框出部分), 电离概率大小除了与驱动激光电场强度改变一致外, 还呈现出振荡特征. 振荡的频率与体系基态-激发态间的能差相同. 由于激发态的布居, 使得原子在长波强激光作用下, 电离不再只是从基态产生, 而有机会从激发态隧穿电离^[50], 电子波包在不同的时刻会分布在空间的不同位置, 因而会导致分布在隧穿势垒一侧的电子电离较大, 而在另一侧无电离产生, 形成了图 4(b) 观察到的电子的密度分布随着时间的改变行为, 进而影响了谐波的发射过程.

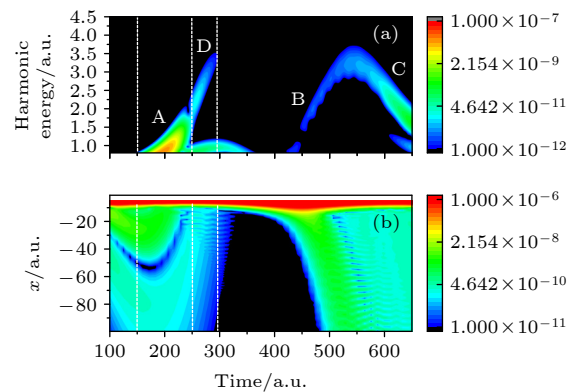


图 4 (a) 波长为 5000 nm 的驱动激光与原子作用产生的高次谐波发射的时间行为; (b) 电子的概率密度随着时间的变化

Fig. 4. (a) Temporal behavior of high-order harmonic generated by the irradiated by the driving laser with a wavelength of 5000 nm; (b) variation of electron probability density with time.

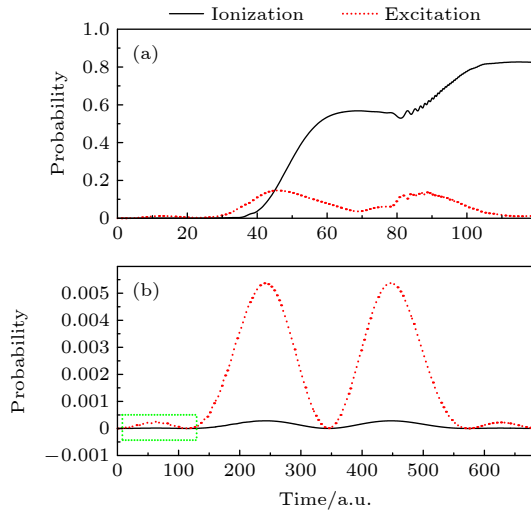


图 5 (a) 波长为 1000 nm 和 (b) 5000 nm 驱动激光辐照原子的激发态布居 (红色点线) 和电离态布居 (黑色实线) 随着时间的变化

Fig. 5. Variation of excited states population (red dotted line) and continuum states population (black solid line) of atoms irradiated with a driving laser at a wavelength of (a) 1000 nm and (b) 5000 nm with time.

在理解了波长对原子谐波发射影响的基础上, 进一步计算了相应的阿秒脉冲. 图 6 给出了利用能量为 2.5—4.0 a.u. 谐波合成的超短脉冲强度随着时间的改变. 从图中可以看出, 尽管驱动脉冲的持续时间很短, 但仍无法产生孤立阿秒脉冲. 产生的超短脉冲在 50—600 a.u. 附近有很高的强度, 此外在 270 a.u. 附近还可以观察到持续时间很短的光发射, 这一光发射产生的原因是从激发态电离后回核产生. 由于波包弥散效应使得谐波强度随着波长的增加迅速减小, 但如果电离波包来源于激发态,

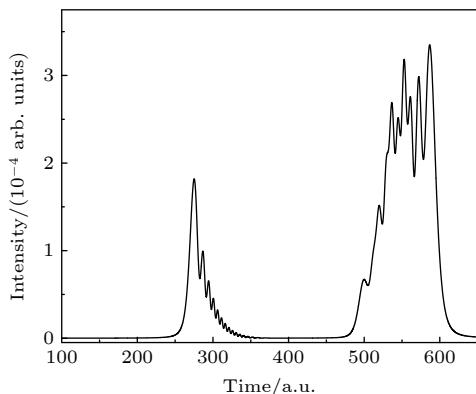


图 6 利用谐波能量 2.5—4.0 a.u. 的谐波发射合成的超短脉冲强度随着时间的改变

Fig. 6. Variation of intensity of ultrashort pulses (synthesized by harmonic emission with harmonic energy 2.5–4.0 a.u.) with time.

谐波强度的减小会变得缓和^[51], 因而从激发态电离的电子产生的谐波为产生高强度的超短阿秒脉冲提供了新的机会.

4 总结

在相同 Keldysh 参数条件下, 系统研究了不同波长的驱动激光与原子相互作用的谐波发射过程. 发现随着驱动激光波长的增加, 电子有更多的可能通过激发态发生电离, 进而产生新的高次谐波发射轨迹并影响阿秒超短脉冲的产生. 在长波条件下, 有可能通过对驱动激光参数的调控, 控制电子的电离通道, 获得新的阿秒脉冲产生方案.

感谢吉林大学超算中心的技术支持.

参考文献

- [1] Protopapas M, Keitel C H, Knight P L 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 389
- [2] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [3] Fu L B, Xin G G, Ye D F, Liu J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 103601
- [4] Porat G, Alon G, Rozen S, Pedatzur O, Krüger M, Azoury D, Natan A, Orenstein G, Bruner B D, Vrakking M J J, Dudovich N 2018 *Nat. Commun.* **9** 2805
- [5] Qiao Y, Huo Y Q, Jiang S C, Yang Y J, Chen J G 2022 *Opt. Express* **30** 9971
- [6] Guo X L, Jin C, He Z Q, Zhao S F, Zhou X X, Cheng Y 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 123301
- [7] Tian Y Y, Li S Y, Wei S S, Guo F M, Zeng S L, Chen J G, Yang Y J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 053202
- [8] Li X F, l'Huillier A, Ferray M, Lompré L A, Mainfray G 1989 *Phys. Rev. A* **39** 5751
- [9] Altucci C, Velotta R, Heesel E, Springate E, Marangos J P, Vozzi C 2006 *Phys. Rev. A* **73** 043411
- [10] Ishii N, Kaneshima K, Kitano K, Kanai T, Watanabe S, Itatani J 2014 *Nat. Commun.* **5** 3331
- [11] Silva F, Teichmann S M, Cousin S L, Hemmer M, Biegert J 2015 *Nat. Commun.* **6** 6611
- [12] Marangos J P 2016 *J. Phys. B* **49** 132001
- [13] Dennis F G, Michael T, Elisabeth R S, Zhang X S, Benjamin R G, Christina L P, Robert K J, Charles B, Daniel E A, Henry C K, Margaret M, Murnane, Giulia F M 2017 *Nat. Photonics* **11** 259
- [14] Tadesse G K, Eschen W, Klas R, Hilbert V, Schelle D, Nathanael A 2018 *Sci. Rep.* **8** 8677
- [15] Avner F, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photonics* **8** 543
- [16] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, Knut R, Zusin D, Popmintchev D, Popmintchev T, Nembach H, Shaw J M, Fleischer A, Kapteyn H, Murnane M, Cohen O 2015 *Nat. Photonics* **9** 99
- [17] Nisoli M, Decleva P, Calegari F, Palacios A, Martín F 2017 *Chem. Rev.* **117** 10760

- [18] Donnelly T D, Ditmire T, Neuman K, Perry M, Falcone R. W 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 2472
- [19] Popmintchev T, Chen M Y, Popmintchevpaul D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiūnas T, Mücke O D, Pugzlys A, Baltuška A, Shim B, Schrauth S E, Gaeta A, Hernández-García C, Plaja L, Becker A, Jaron-Becker A, Murnane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [20] Schiffrin A, Paasch-Colberg T, Karpowicz N, Apalkov V, Gerster D, Mühlbrandt S, Korbman M, Reichert J, Schultze M, Holzner S, Barth J V, Kienberger R, Ernstorfer R, Yakovlev V S, Stockman M I, Krausz F 2013 *Nature* **493** 70
- [21] Wang X W, Wang L, Xiao F, Zhang D W, Lü Z H, Yuan J M, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [22] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, Staudte A, Dorner R, Mullerm H G, Büttiker M, Keller R U 2008 *Science* **322** 1525
- [23] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C D, Sato S A, Whitmore D, Gandman A, Prell J S, Borja L J, Prendergast D, Yabana K, Neumark D M, Leone S R 2014 *Science* **346** 1348
- [24] Kraus P M, Mignolet B, Baykusheva D, Rupenyan A, Horný L, Penka E F, Grassi G, Tolstikhin O I, Schneider J, Jensen F, Madsen L B, Bandrauk A D, Remacle F, Wörner H J 2015 *Science* **350** 790
- [25] Hassan M Th, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [26] Calegari F, Trabattori A, Palacios A, Ayuso D, Castrovilli M C, Greenwood J B, Decleva P, Martín F, Nisoli M 2016 *J. Phys. B* **49** 142001
- [27] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **4** 509
- [28] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, Baltuska A, Yakovlev V, Bammer F, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2004 *Nature* **427** 817821
- [29] Andriukaitis G, Balčiūnas T, Ališauskas S, Pugzlys A, Baltuška A, Popmintchev T, Chen M C, Murnane M M, Kapteyn H C 2011 *Opt. Lett.* **36** 2755
- [30] Krebs M, Hädrich S, Demmler S, Rothhardt J, Zair A, Chipperfield L, Limpert J, Tünnermann A 2013 *Nat. Photonics* **7** 555
- [31] Liang H k, Krogen P, Wang Z, Park H, Kroh T, Zawilski K, Schunemann P, Moses J, DiMauro L F, Kärtner F X, Hong K H 2017 *Nat. Commun.* **8** 141
- [32] Labaye F, Gaponenko M, Modsching N, Brochard P, Paradis C, Schilt S, Wittwer V J, Stüdmeyer T 2019 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **25** 880619
- [33] Pires H, Baudisch M, Sanchez D, Hemmer M, Biegert J 2015 *Prog. Quantum. Electron.* **43** 1
- [34] Musheghyan M, Geetha P P, Faccialà D, Pusala A, Crippa G, Campolo A, Ciriolo A G, Devetta M, Assion A, Manzoni C, Vozzi C, Stagira S 2020 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** 185402
- [35] Zhu X L, Chen M, Weng S M, McKenna P, Sheng Z M, Zhang J 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 054024
- [36] Tomilov S, Hoffmann M, Wang Y, Saraceno C J 2021 *J. Photonics* **3** 022002
- [37] Grafenstein L von, Bock M, Ueberschaer D, Escoto E, Koç A, Zawilski K, Schunemann P, Griebner U, Elsaesser T 2020 *Opt. Lett.* **45** 5998
- [38] Tian K, He L, Yang X, Liang H 2021 *Photonics* **8** 290
- [39] Feng T, Heilmann A, Bock M, Ehrentraut L, Witting T, Yu H H, Stiel H, Eisbitt S, Schntürer M 2020 *Opt. Express* **28** 8724
- [40] Leshchenko V E, Talbert B K, Lai Y H, Li S, Tang Y, Hageman S J, Smith G, Agostini P, DiMauro L F, Blaga C I 2020 *Optica* **7** 981
- [41] Schoenlein R, Elsaesser T, Holldack K, Huang Z, Kapteyn H, Murnane M, Woerner M 2019 *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A* **377** 20180384
- [42] Kleine C, Ekimova M, Goldsztejn G, Raabe S, Strüber C, Ludwig J, Yarlagadda S, Eisbitt S, Vrakking M J J, Elsaesser T, Nibbering E T J, Rouzée A 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 52
- [43] Pupeikis J, Chevrenil P A, Bigler N, Gallmann L, Phillips C R, Keller U 2020 *Optics* **7** 168
- [44] Duchon C E 1979 *J. Appl. Meteorol. Clim.* **18** 1016
- [45] Qiao Y, Wu D, Chen J G, Wang J, Guo F M, Yang Y J 2019 *Phys. Rev. A* **100** 06342
- [46] Wang J, Chen G, Li S Y, Ding D J, Chen J G, Guo F M, Yang Y J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033848
- [47] Wang J, Chen G, Guo F M, Li S Y, Chen J G, Yang Y J 2013 *Chin. Phys. B* **22** 033203
- [48] Yang Y J, Chen J G, Chi F P, Zhu Q R, Zhang H X, Sun J Z 2007 *Chin. Phys. Lett.* **6** 1537
- [49] Guo F M, Yang Y J, Jin M X, Ding D J, Zhu Q R 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 053201
- [50] Serebryannikov E E, Zheltikov A M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 123901
- [51] Chen J, Zeng B, Liu X, Cheng Y, Xu Z 2009 *New J. Phys.* **11** 113021

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Influence of driving-laser wavelength on emission of high-order harmonic wave generated by atoms irradiated by ultrashort laser pulse^{*}

Zhang Di-Yu¹⁾²⁾ Lan Wen-Di¹⁾²⁾ Li Xue-Feng¹⁾²⁾ Zhang Su-Su¹⁾²⁾
 Guo Fu-Ming¹⁾²⁾ Yang Yu-Jun^{1)2)†}

¹⁾ (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

²⁾ (*Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy, Jilin University, Changchun 130012, China*)

(Received 19 April 2022; revised manuscript received 17 May 2022)

Abstract

With the numerical solution of the time-dependent Schrodinger equation, we theoretically investigate the high-order harmonic emissions generated by the atoms irradiated by the ultrashort lasers with different wavelengths but the same pondermotive energy. As the driving-laser wavelength increases, the intensity of the high-harmonic emission decreases. Comparing with the harmonic spectra of atoms driven by a 1000-nm-wavelength laser pulse, a new peak structure appears in the spectra of atoms driven by a 5000-nm-wavelength laser wavelength. It is shown by the time-frequency analysis of the harmonic emission, the time-dependent evolution of the electron density, and the time-dependent population analysis of the eigenstate, that the physical mechanism behind the new peak appearing in the harmonic spectra is the interference between the harmonic emission generated by the electrons ionized out of the excited atoms returning to the parent ions and the harmonic emissions resulting from the ground state ionization.

Keywords: higher harmonic generation, mid-infrared laser, attosecond pulse

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: [10.7498/aps.71.20220743](https://doi.org/10.7498/aps.71.20220743)

^{*} Project supported by the National Major Research Plan of China (Grant No. 2019YFA0307700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12074145, 11627807, 11774129).

[†] Corresponding author. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn



驱动激光波长对超短脉冲与原子相互作用产生高次谐波发射的影响

张颀玉 蓝文迪 李雪峰 张稣稣 郭福明 杨玉军

Influence of driving-laser wavelength on emission of high-order harmonic wave generated by atoms irradiated by ultrashort laser pulse

Zhang Di-Yu Lan Wen-Di Li Xue-Feng Zhang Su-Su Guo Fu-Ming Yang Yu-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233205 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220743

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220743>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

基于铋纳米片可饱和吸收被动调Q中红外单晶光纤激光器

Bismuth nanosheets based saturable-absorption passively Q-switching mid-infrared single-crystal fiber laser

物理学报. 2020, 69(18): 184205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200337>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

高次谐波发射的亚原子尺度研究

Subatomic scale study of atom-generated higher-order harmonic

物理学报. 2019, 68(17): 173202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190790>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

专题: 阿秒物理

优化双色近红外激光及其二次谐波场 驱动原子产生孤立阿秒脉冲*

杜进旭¹⁾ 王国利^{1)†} 李小勇²⁾ 周效信¹⁾³⁾

1) (西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

2) (西北民族大学电气工程学院, 兰州 730030)

3) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2022年7月11日收到; 2022年8月5日收到修改稿)

随着激光技术的快速发展, 通过多色激光的相干合成实现波形的调控已成为可能, 这为实现超短孤立的阿秒脉冲输出创造了条件. 本文基于强场近似方法, 优化双色近红外激光与二次谐波场的相干叠加脉冲驱动氩原子产生孤立阿秒脉冲. 研究表明, 在双色近红外基础上加入倍频光后, 通过优化激光参数, 能使单原子高次谐波的发射性质得到很大的改善, 在一定能量范围内接近实现无啁啾发射, 从而获得较短的孤立阿秒脉冲. 在考虑了气体的宏观传播效应后, 选择合适的实验条件, 能够产生脉冲宽度达 40 as 的孤立脉冲. 最后研究了气体压强对高次谐波性质和阿秒脉冲的影响. 该研究可为实验室利用近红外激光脉冲驱动原子获得超短孤立阿秒脉冲提供参考.

关键词: 高次谐波, 孤立阿秒脉冲, 优化激光波形, 宏观传播

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221375

1 引言

强激光与气体相互作用产生的高次谐波 (high-order harmonic generation, HHG) 是一种非常重要的桌面相干光源, 它的频率可以覆盖从极紫外 (XUV) 到软 X 射线区域^[1-4]. 由于具有频谱宽的特点, 高次谐波最重要的应用之一是产生阿秒 (attosecond, as) 脉冲. 使用这些超短的阿秒脉冲可以探测和控制原子和分子中的电子动力学过程^[5-7]. 高次谐波的产生过程可以通过三步模型来解释^[8,9], 即在激光场作用下原子分子中的电子首先发生隧穿电离, 接着在激光场中传播, 最后与母核复合发出高能谐波光子. 根据该模型, 谐波在每半个激光光周期内发射一次, 由此产生的高次谐波在时间上

以阿秒脉冲链的形式出现^[5]. 为了获得更好的时间分辨率, 需要采用选通办法以在众多发射中选择一次有效的高次谐波辐射, 从而产生单个的孤立阿秒脉冲 (isolated attosecond pulse, IAP). 自从 2001 年 Hentschel 等^[6] 首次报道由高次谐波生成 650 as 脉冲以来, 已经发展了多种基于传统多周期钛:蓝宝石激光器产生 IAP 的选通技术, 如振幅选通 (amplitude gating)^[10]、电离选通 (ionization gating)^[11]、阿秒灯塔 (attosecond lighthouse)^[12,13] 等.

另外, 采用合适波形的驱动激光, 将高次谐波辐射限制在半个光学周期内, 也可以产生孤立阿秒脉冲. 如 Goulielmarkis 等^[10] 使用亚 4 fs 的近单周期驱动脉冲产生了带宽为 40 eV 的超连续谐波谱, 从而获得了脉冲能量为 0.5 pJ 的 80 as 脉冲. 这种利用少周期脉冲驱动产生孤立阿秒脉冲的方法必

* 国家自然科学基金 (批准号: 11864037, 91850209, 11964033) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wanggl@nwnu.edu.cn

须要求单个脉冲的载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 稳定且精准可控, 这对实验室激光技术提出了很大的挑战^[14,15]. 对于长脉冲, 根据谐波发射强度与驱动激光椭圆偏率的依赖关系^[16], 可用两束具有合适时间延迟的反旋圆偏振激光限制谐波发射时间, 获得孤立阿秒脉冲. 如 Li 等^[17] 利用这种偏振选通 (polarization gating) 技术获得了 53 as 的 IAP.

使用钛:蓝宝石激光作为驱动光源, 高次谐波的截止能量一般可以达到约 100 eV. 若要进一步缩短阿秒脉冲的宽度 (对应更宽的谐波连续谱)、提高它的中心能量, 则必须采用更长波长的驱动激光. 例如, 2017 年, Gaumnitz 等^[18] 使用载波包络相位稳定的中红外激光器生成了带宽约为 100 eV、光子能量达到 180 eV、脉冲宽度为 43 as 的孤立阿秒脉冲. 这是目前实验室产生孤立阿秒脉冲的最短宽度. 我国的相关研究团队也已经能够在实验室通过双光门选通技术产生最短达 88 as 的孤立阿秒脉冲^[19], 对于阿秒脉冲的产生和发展国内已有很好的评述性文章发表^[20,21].

具有相同偏振方向的多色线偏振激光场可以有效提高谐波产额和截止能量^[22,23]. 如果激光参数选取合适, 该类型驱动激光则可以产生孤立阿秒脉冲^[24-30]. 该方法消除了对驱动激光须为短脉冲 (亚周期) 的限制^[31]. 实验上, 激光场相干合成成为近年来发展起来的一项先进技术. 利用该技术, 少数实验室已可以产生任意波形的光场. 但由于需要对包括 CEP 在内的众多参数进行精准控制, 该技术在实验操作上仍具有很高的难度^[14,15]. 而我们最近的工作表明^[32], 对于优化的多色场, CEP 虽然会影响激光波形, 但并不影响产生阿秒脉冲的宽度和强度, 这意味着在利用波形相干合成技术产生超短孤立阿秒脉冲的过程中, 只需保持 CEP 稳定即可, 有效降低了实验操作难度. 此外, Pan 等^[33] 通过改变气体压强来有效选择量子路径而获得孤立的阿秒脉冲. 为了缩短阿秒脉冲持续时间, Wang 等^[34] 提出利用空间非均匀电场可以减小谐波发射啁啾, 产生超短孤立阿秒脉冲, 但该方法需借助于纳米结构的等离激元实现. 本文利用两束近红外激光及它们的二倍频场相干合成组合场驱动氦原子, 通过优化激光参数, 实现超短孤立阿秒脉冲输出的可能性. 这既可以使得光子中心能量达到 200 eV, 与中红外驱动激光相比, 又能保证阿秒脉冲的辐射强

度^[35-40]. 经优化后的激光组合场与氦原子相互作用, 几乎可以实现无啁啾的谐波发射. 考虑了宏观传播效应后, 获得了脉宽达 40 as 的孤立阿秒脉冲输出. 本文模拟的激光参数以及实验条件在现有的实验室能够实现, 所得到的结论有望在实验室得到验证.

2 理论方法

2.1 激光波形的优化

多色相干合成的驱动激光场可以写成

$$E(t) = \sum_{i=1}^n E_i f_i(t - \delta_i) \cos[\omega_i(t - \delta_i) + \varphi_i], \quad (1)$$

其中 E_i 是电场振幅, $f_i(t) = e^{-2 \ln 2 t^2 / \tau_i^2}$ 为高斯脉冲包络, τ_i 是脉冲持续时间 (full width at half maximum, FWHM), ω_i 为激光角频率, φ_i 为载波包络相位, δ_i 为相对时间延迟. 优化过程中, 取 $\delta_1 = 0$, $\varphi_i = 0$ (也可取其他值, 或通过优化得到, 并不影响最终阿秒脉冲的宽度^[32]). 每束激光脉冲波长保持不变, 若采用双色场 ($n = 2$), 激光的波长均在近红外, 分别取为 $\lambda_1 = 800$ nm, $\lambda_2 = 1200$ nm, 这两种波长的激光在实验室均容易产生. 如果是三色场合成, 则增加一束波长为 λ_2 两倍频的激光, 即 $\lambda_3 = 600$ nm. 如采用四色场, 则再添加一束 λ_1 的倍频场, 即 $\lambda_4 = 400$ nm. 其他参数 (E_i, δ_i) 采用遗传算法 (genetic algorithm, GA) 优化适应度函数得到. E_i 的搜寻空间决定于总激光强度, δ_i 的优化空间限定在 $[-3$ fs, 3 fs]. 遗传算法是一种能处理高度非线性响应函数的优化算法, 已应用于强场现象的研究^[41,42]. 在优化过程中, 从随机生成的个体群体开始, 计算每个个体的适应度值; 通过遗传、交叉、变异等运算产生下一代, 直到适应度值达到收敛, 优化过程终止. 优化迭代代数取为 3000, 每代的个体数为 10, 采用的适应度函数为

$$F = \frac{I_1}{I_2 \times \Delta\tau}, \quad (2)$$

其中, I_1 为所需单原子产生的阿秒脉冲强度, I_2 为其余阿秒脉冲强度, $\Delta\tau$ 为目标阿秒脉冲的宽度.

2.2 单原子谐波和阿秒脉冲的计算

本文研究惰性气体氦原子在组合场驱动下发射高次谐波的性质及其合成的阿秒脉冲特点. 首先采用强场近似 (strong field approximation, SFA)

理论^[43,44]计算氖原子在优化的组合场中诱导的含时偶极矩:

$$x(t) = i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d^* [p_{st}(t, \tau) + A(t)] \times a^*(t) e^{-iS_{st}(t, \tau)} d [p_{st}(t, \tau) + A(t - \tau)] \times E(t - \tau) a(t - \tau) + \text{c.c.}, \quad (3)$$

式中 $E(t)$ 为组合场的电场分量, $A(t)$ 为组合场的矢势, $a(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} \int_{-\infty}^t w(\tau) d\tau \right]$ 为原子的基态振幅, 电离速率 $w(\tau)$ 由 ADK (Ammosov-Delone-Krainov) 模型^[45] 计算得到, $d(t)$ 为原子从基态到连续态的偶极跃迁矩阵元. 正则动量 p_{st} 和半经典作用量 S_{st} 由下式给出:

$$p_{st}(t, \tau) = -\frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t dt'' A(t''), \quad (4)$$

$$S_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt'' \left\{ \frac{1}{2} [p_{st} + A(t'')]^2 + I_p \right\}, \quad (5)$$

其中, $I_p = 21.6 \text{ eV}$ 为氖原子的电离势. 然后通过对方程 (3) 做傅里叶变换, 可以得到单原子的高次谐波谱 $S(\omega) \propto \omega^4 |x(\omega)|^2$. 通过叠加某一能量范围的谐波, 则得到单原子阿秒脉冲.

2.3 宏观高次谐波和阿秒脉冲的计算

得到单个原子合成最优单个阿秒脉冲的高次谐波后, 还需考虑激光脉冲和高次谐波在气体介质中的传播, 因为当激光与喷嘴喷射出的气体相互作用时, 大量的氖原子均会发射高次谐波, 同时, 被电离的气体形成等离子体也会对激光束的性质产生影响. 如果相互作用区域内的激光电场分布为 $E(r, z, t)$, 其在传播过程中满足三维麦克斯韦波动方程^[37,46,47]:

$$\nabla^2 E(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial J_{\text{abs}}(r, z, t)}{\partial t} + \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 - \eta_{\text{eff}}^2) E(r, z, t), \quad (6)$$

式中 z 为激光传播方向, $\eta_{\text{eff}}(r, z, t)$ 为有效折射率:

$$\eta_{\text{eff}}(r, z, t) = \eta_0(r, z, t) + \eta_2 I(r, z, t) - \frac{\omega_p^2(r, z, t)}{2\omega_0^2}, \quad (7)$$

其中, 线性项 $\eta_0 = 1 + \delta_1 - i\beta_1$ 考虑了中性原子的折射 (δ_1) 和吸收 (β_1), 第二项描述了依赖于瞬时激光强度 $I(t)$ 的光学克尔非线性效应, 第三项则考虑了等离子体效应, 等离子体频率 $\omega_p(t) = [e^2 n_e(t) / (\varepsilon_0 m_e)]^{1/2}$, m_e 和 e 分别为电子质量和电荷, $n_e(t)$ 是

自由电子密度.

位于任意位置处的原子发射的高次谐波场 $E_h(r, z, t)$ 在等离子体中演化满足下面的方程^[37]:

$$\nabla^2 E_h(r, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_h(r, z, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P(r, z, t)}{\partial t^2}, \quad (8)$$

其中, $P(r, z, t)$ 是依赖于驱动电场 $E(r, z, t)$ 的极化项, 其可分解为线性分量和非线性分量, 线性极化率 $\chi^{(1)}(\omega)$ 包含了谐波的线性色散和吸收效应, 非线性极化项 $P_{nl}(r, z, t)$ 可以表示为

$$P_{nl}(r, z, t) = [n_0 - n_e(r, z, t)] D(r, z, t), \quad (9)$$

其中, n_0 为初始中性原子的密度, $D(r, z, t)$ 为单原子偶极矩, 可由 (3) 式给出. 一旦获得气体喷嘴出口面 (近场) 的谐波, 通过 Hankel 变换便可得到远场谐波 (收集处). 叠加特定空间和能量范围的谐波可得到宏观阿秒脉冲^[48].

3 结果与讨论

为了比较由不同成分合成的驱动场对氖原子发射高次谐波及其相应的阿秒脉冲的影响, 首先通过遗传算法优化两色近红外场组合, 即 $800 \text{ nm} + 1200 \text{ nm}$, 激光总强度取 $8.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 得到相应合成电场的波形, 如图 1(a) 中红色实线所示 (对应的激光参数在表 1 的第 2 列给出). 由图可以看出, 通过相干合成两束 16 fs 激光得到了亚周期脉冲. 图 1(b) 中红色实线给出了合成场与 Ne 原子相互作用产生的高次谐波谱. 可以看出, 谐波谱从 140 阶到 270 阶为连续谱. 通过叠加 140—190 阶谐波, 得到了强弱不同的两个阿秒脉冲 (图 1(c)), 其中较强脉冲的宽度约为 50 as . 为了理解阿秒脉冲的发射特点, 对谐波进行了时频分析, 结果如图 1(e) 所示. 由谐波的时频分析图可以看出, 较强的阿秒脉冲来源于具有正啁啾的电子短轨道发射, 而较弱的脉冲则由负啁啾的长轨道贡献. 已有的研究表明^[48], 当谐波经过宏观演化后, 长轨道贡献的脉冲将被抑制, 仅有短轨道发射的单个阿秒脉冲被保留.

为了能够缩短两色近红外激光组合场产生的阿秒脉冲宽度, 我们在两色近红外激光组合的基础上加入了 1200 nm 的倍频场 (即 600 nm 的激光) 形成三色合成场来驱动氖原子. 为了与双色场具有相近的电离几率 (相差不到 5%), 三色场的总激光强度取为 $7.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 图 1(a) 中蓝色虚线给

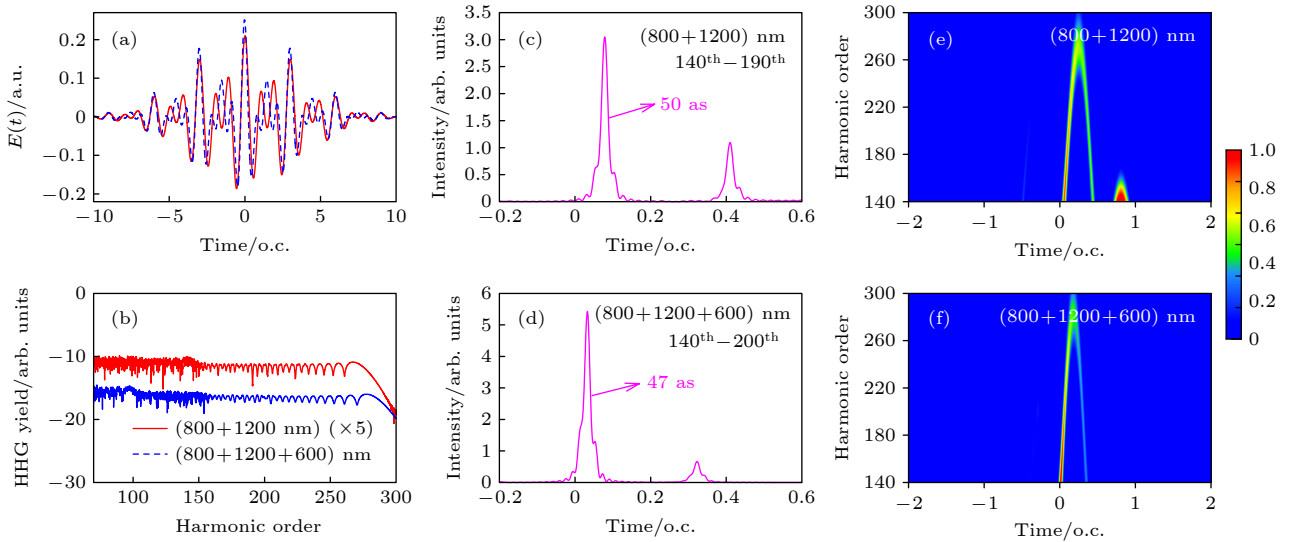


图 1 优化双色场 (800 nm + 1200 nm) 和三色场 (800 nm + 1200 nm + 600 nm) 产生的高次谐波和阿秒脉冲 (a) 优化的激光波形; (b) 两种激光场产生的 Ne 原子高次谐波谱, 为了观察谐波谱的特征, 对双色场谐波谱做了平移处理, 并给出了谐波谱的乘因子; (c), (d) 双色场和三色场下分别叠加 140—190 阶、140—200 阶谐波获得的阿秒脉冲; (e), (f) 双色场和三色场产生的谐波所对应的时频分析, 已将数据归一化处理. o.c. 表示 800 nm 激光脉冲的光学周期

Fig. 1. The high-order harmonic spectra and attosecond pulses generated by optimized two- (800 nm + 1200 nm) and three-color (800 nm + 1200 nm + 600 nm) laser fields: (a) Optimized laser waveforms; (b) Ne harmonic spectra generated by two laser pulses, the harmonic spectrum of two-color field is shifted for easy observation, and the multiplied factors is indicated; (c), (d) attosecond pulses synthesized from harmonics H140–H190 and H140–H200, driven by two- and three-color fields, respectively; (e), (f) time-frequency analysis of the harmonic spectra generated by optimized two- and three-color field, the data have been normalized. o.c. is the optical cycle of 800 nm laser pulse.

出了三色场的优化电场波形, 对应的激光参数在表 1 的第 3 列列出. 与两色近红外组合场相比, 优化三色场的电场波形并没有非常显著的改变, 特别是在阿秒脉冲的主要发射区 (即 $t = 0$ 附近). 图 1(b) 中蓝色线为三色合成场驱动 Ne 原子产生的高次谐波谱, 可以看出, 当加入 1200 nm 脉冲的倍频场后, 产生的谐波截止能量略有提高, 谐波平台区域的连续谱更为平滑, 这将更有利于合成孤立的阿秒脉冲. 图 1(d) 给出了叠加 140—200 阶谐波获得的最短阿秒脉冲. 此时, 得到的仍然是两个阿秒脉冲, 但是, 较弱的那个脉冲强度进一步降低; 而较强脉冲的宽度略有缩短 (47 as). 由图 1(f) 的时频分析可知, 电子长轨道的贡献明显得到抑制. 然而, 产生较强阿秒脉冲的电子短轨道发射的啁啾性并没有得到明显的改善, 因此, 加入 1200 nm 的倍频场后阿秒脉冲宽度的缩短并不十分明显.

如何能够改善短轨道发射的啁啾性是缩短阿秒脉冲的关键. 我们尝试在前面三色场的基础上, 再加入 800 nm 激光的倍频场形成所谓的四色合成场, 并对四色场的激光参数进行优化, 表 1 中第 4 列给出了总峰值强度为 $7.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时优化的四色激光场参数, 合成的亚周期波形如图 2(a)

表 1 激光总强度分别为 $8.0I_0$, $7.5I_0$ 和 $7.0I_0$ 时优化的双色场、三色场和四色场激光参数 ($I_0 = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)

Table 1. Optimized laser parameters for two-, three- and four-color fields with total peak intensity of $8.0I_0$, $7.5I_0$ and $7.0I_0$, respectively ($I_0 = 1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

参数	$I = 8.0I_0$	$I = 7.5I_0$	$I = 7.0I_0$
	双色场	三色场	四色场
I_1/I_0	<i>5.056</i>	<i>1.991</i>	<i>0.943</i>
I_2/I_0	<i>2.944</i>	<i>2.684</i>	<i>0.757</i>
I_3/I_0		<i>2.825</i>	<i>1.577</i>
I_4/I_0			<i>3.723</i>
λ_1/nm	800.0	800.0	800.0
λ_2/nm	1200.0	1200.0	1200.0
λ_3/nm		600.0	600.0
λ_4/nm			400.0
τ_1/fs	16.0	16.0	16.0
τ_2/fs	16.0	16.0	19.0
τ_3/fs		16.0	19.0
τ_4/fs			16.0
δ_1/fs	0.0	0.0	0.0
δ_2/fs	<i>-0.136</i>	<i>0.026</i>	<i>-0.389</i>
δ_3/fs		<i>0.092</i>	<i>0.328</i>
δ_4/fs			<i>1.828</i>

注: 斜体显示的是优化得到的值, 常规字体为优化中固定的参数.

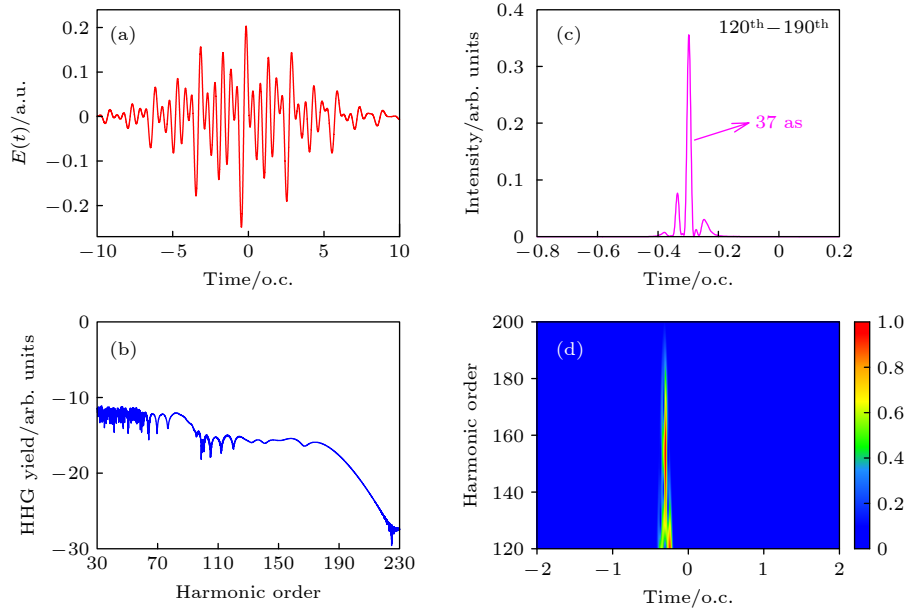


图2 优化四色场(800 nm + 400 nm + 1200 nm + 600 nm)产生的高次谐波和阿秒脉冲 (a) 激光波形; (b) 高次谐波谱; (c) 叠加120—190阶谐波所获得的阿秒脉冲; (d) 谐波所对应的时频分析

Fig. 2. The high-order harmonics and attosecond pulses generated by optimized four-color field (800 nm + 400 nm + 1200 nm + 600 nm): (a) Optimized laser waveform; (b) harmonic spectra; (c) attosecond pulses synthesized from harmonics H120-H190; (d) time-frequency analysis of the harmonics.

所示。图2(b)给出了优化四色场产生的谐波谱，可以看出谐波谱在100—190阶范围内具有很好的超连续性，通过叠加平台区120—190阶谐波，得到了脉冲宽度为37 as的单个脉冲(图2(c))。相比优化的三色场驱动情况，可以发现经优化的四色合成场驱动原子所获得的阿秒脉冲宽度得到了明显的缩短。同样，对四色合成场驱动的谐波谱进行了时频分析(图2(d))，结果表明，在优化四色场驱动下，氦原子发射的谐波谱具有十分明显的特征，不仅电子长轨道对谐波的贡献完全被抑制，而且，在120—190阶的谐波范围内几乎实现了无啁啾发射，表明在该频段不同能量的谐波几乎在同一时间发射。

另一方面，若从半经典的“三步模型”来理解上述现象，表明电子隧穿电离的时间可能不同，电子会在激光场的作用下形成多个电子轨道，它们在激光场中获得的能量也会不同，但是会在几乎相同的时间内与母离子复合，发射出不同能量的高次谐波。为此，我们进行了经典计算与分析。通过求解电子在优化四色场中的经典方程，给出电子在组合场中的电离时间和复合时间与电子能量之间的关系，图3给出了经典计算的结果。从图3可以看出，当电子动能大于185 eV(对应120阶谐波)时，对于给定的能量存在多个电子路径，它们对应的电离时刻不同，主要有4个电离时刻，如图3中标定的

i_1 — i_4 ，而这些不同路径所对应的电子复合时间几乎都被限制在-0.4—0.25光周期间内。由此可见，大于120阶的高次谐波尽管还存在一定的啁啾性，但是，这个啁啾系数是很小的，与量子计算的结果在一定程度上符合得很好。由上面的计算和分析可以看出，在优化的两束近红外以及它们的倍频场合成的四色场作用下，从氦原子发射的高次谐波能够获得较短阿秒脉冲的原因是在较宽的能量范围内谐波发射时间相差很小。这与使用近红外+可见+紫外相干合成场^[49]、近红外+红外^[50]、近红外+紫外^[51]驱动原子发射高次谐波的方案有所不同。

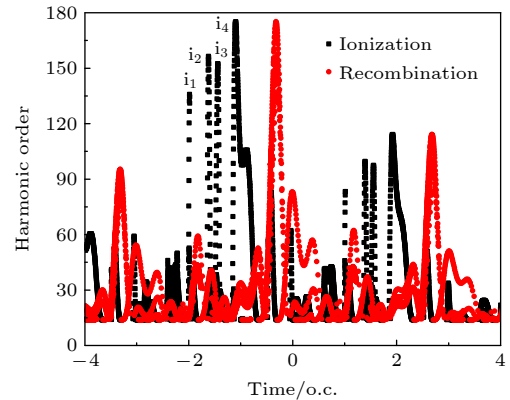


图3 优化四色场中电子动力学的经典分析

Fig. 3. Classical analysis of electron dynamics in optimized four-color fields.

需要说明的是,在不考虑谐波来源是短轨道还是长轨道贡献时,优化四色场最短可产生脉冲宽度为 27 as 的单原子孤立脉冲(结果未给出).然而,这种情况下谐波辐射主要来自长轨道贡献,而长轨道辐射产生的谐波在考虑宏观传播后,很难在传播轴附近实现相位匹配,从而增加了实验对谐波收集的困难.

为了从实验上最终获得孤立的阿秒脉冲,接下来通过求解麦克斯韦方程将上述优化后的四色波形和发射的高次谐波在介质中的传播效应加以考虑.利用表 1 中优化的四色场激光波形作为气体靶中心位置处的激光场.考虑实验条件限制,为了获得短的孤立阿秒脉冲,进一步优化实验条件.最终选取的参数为:气体射流宽度为 1 mm,射流内均匀分布的气体压力为 75 Torr (1 Torr \approx 133.322 Pa),气体射流中心位置位于激光焦斑后 2 mm 处,各激光束腰为 150 μ m,谐波信号收集器(远场)置于激光焦斑后 500 mm 处.

图 4(a) 和图 4(b) 分别给出了优化四色场产生的高阶宏观谐波在近场和远场的空间分布.可以看到,谐波由近场传播到远场后,谐波主要分布在传播轴附近(径向距离小于 ~ 1 mm,对应谐波发散角小于 2 mrad).这样低发散角相干超连续谐波谱,更有利于收集谐波合成短的孤立阿秒脉冲.采用一半径为 r 的圆孔收集远场某一空间范围的谐波,并且消除了不同径向距离处的近场谐波传播到远场时由于发散不同所引起的光程差^[52].图 4(c) 给出

了在远场利用不同孔径圆孔所收集的高次谐波,可以看出,不同空间范围的 100—200 阶谐波均有很好的连续性,叠加相对应的 105—195 阶谐波获得了单个阿秒脉冲(图 4(d)).采用不同半径的空间滤波器对产生的阿秒脉冲强度和宽度均有影响.若不采用任何空间滤波器(总谐波),叠加相同光谱范围谐波可获得较高强度的阿秒脉冲,然而脉冲宽度也较大(70 as).采用半径为 0.2 mm 的空间滤波器对谐波进行滤波,则可获得 50 as 的单个脉冲,如果进一步缩小空间滤波器半径至 0.1 mm 时,阿秒脉冲宽度可短至 40 as.当然,空间滤波范围的减小,伴随的是阿秒脉冲强度的进一步降低.为了理解单个宏观阿秒脉冲是如何形成的,在图 5(a) 和图 5(b) 中分别给出了 105—195 阶谐波辐射在远场的时空分布和半径为 0.2 mm 滤波器收集到谐波的时频分析.从图 5(a) 可以看出,在 $t = -0.38$ o.c. (o.c. 为 800 nm 激光光周期) 时,谐波辐射很强,周围有较弱的辐射,由于球面镜不能完全消除不同径向阿秒发射的光程差,因此随着空间滤波器半径的增大,谐波发射时间范围增大,这解释了为什么随着空间滤波器半径的增大阿秒脉冲宽增大.从图 5(b) 可以发现,考虑宏观传播后,单一电子短轨道辐射仍能保持无啁啾发射,这一结果支持了叠加一定范围谐波生成单个阿秒脉冲的可能性.

由于驱动激光在气体射流中传播时会受到色散、克尔非线性效应和等离子体散焦的影响而发生

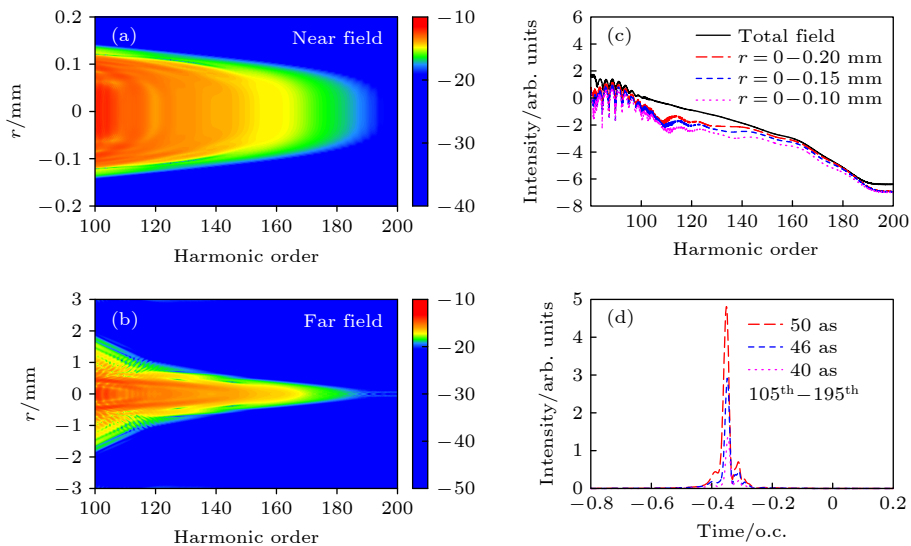


图 4 优化四色场产生的宏观谐波和阿秒脉冲 (a), (b) 分别在近场和远场 ($z = 500$ mm) 谐波辐射的空间分布; (c) 利用不同孔径 r 的圆孔在远场收集到的谐波; (d) 叠加不同空间范围 105—195 阶谐波所获得的阿秒脉冲

Fig. 4. The macroscopic harmonics and attosecond pulses generated by optimized four-color fields: (a), (b) The spatial distributions of harmonic emission in the near and far field, respectively; (c) harmonic spectra collected by a circular filter with different aperture r at the far field ($z = 500$ mm); (d) attosecond pulses synthesized by harmonics H105-H195 from different spatial range.

波形的变化, 从而对产生的谐波造成影响. 当气室压强发生变化时, 加入倍频场后的组合脉冲是否也能产生短的孤立阿秒脉冲? 为此, 另外选择 20 Torr 较低压强和 100 Torr 较高压强, 计算了宏观高次谐波光谱, 其他参数与图 4 相同. 由图 6(a) 可以看出, 随着压强的增大, 由于发射体 (原子数) 数量增

多, 平台谐波产率增加. 同时发现, 在选定的这两个压强下, 当高次谐波光子能量大于 160 eV (对应 105 阶谐波) 时电子短轨道都可以保持无啁啾发射, 如图 6(b) 和图 6(c) 所示. 选择 $r < 0.2$ mm 的远场谐波, 在 20 Torr 压强下, 叠加 100—190 阶谐波, 可获得 41 as 单个脉冲 (图 6(d)); 压强为 100 Torr 时,

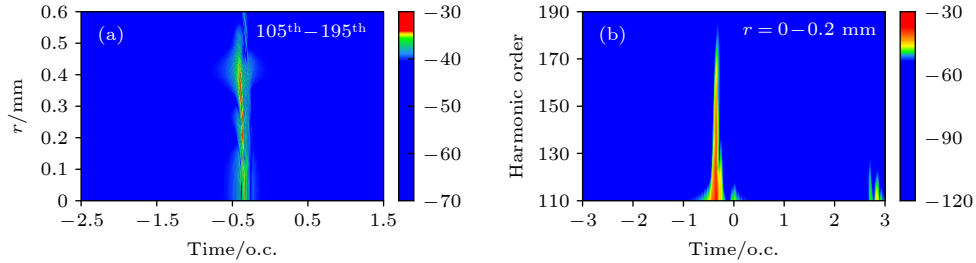


图 5 优化四色场产生的远场谐波时空分布和小波时频分析 (a) 位于远场 $z = 500$ mm 处 105—195 阶谐波发射时间随径向距离的依赖关系; (b) $r = 0-0.2$ mm 空间范围谐波的时频分析

Fig. 5. Spatial distribution and time-frequency wavelet analysis of harmonics generated by optimized four-color fields: (a) The dependence of emission time of harmonics H105-H195 on their spatial distance at the far field $z = 500$ mm; (b) time-frequency analysis of harmonics from 0 to 0.2 mm.

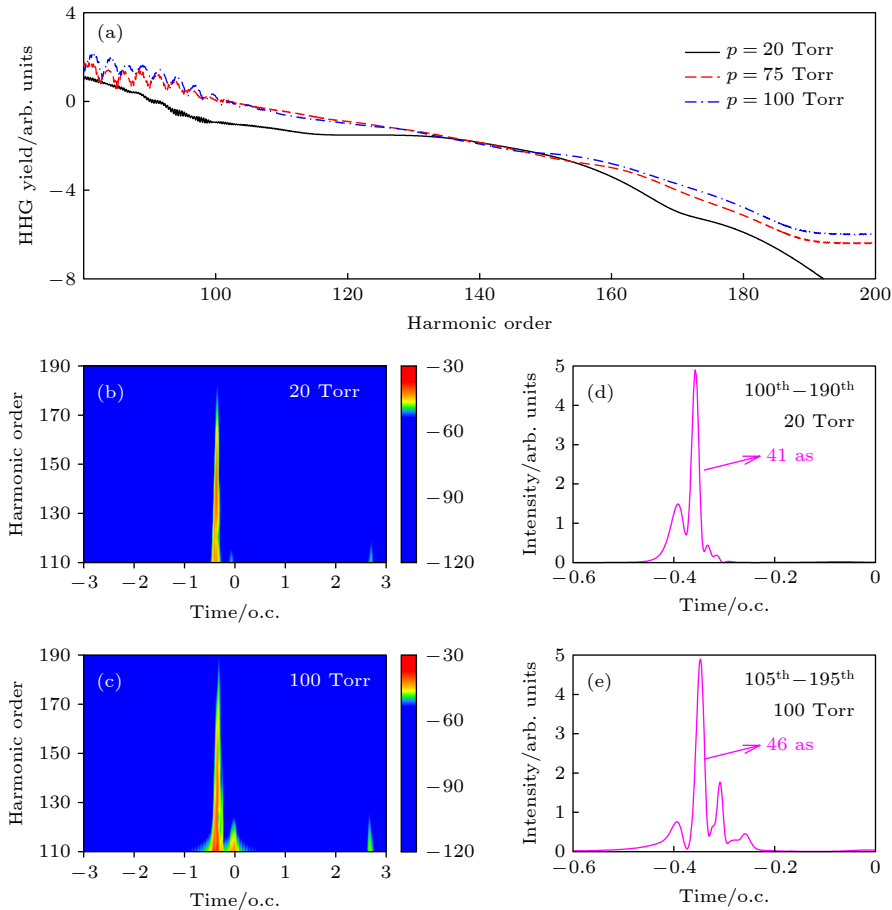


图 6 优化四色场在不同气体压强下产生的宏观谐波和阿秒脉冲 (a) 在 20, 75 和 100 Torr 不同气压下四色场产生的宏观谐波谱; (b), (c) 在 20 Torr 和 100 Torr 气压下, $r < 0.2$ mm 空间范围远场谐波的时频分析; (d), (e) 两个压强下分别获得的阿秒脉冲

Fig. 6. The macroscopic harmonic and attosecond pulses generated by optimized four-color field at different gas pressures: (a) Macroscopic harmonic spectra at gas pressures of 20, 75 and 100 Torr; (b), (c) time-frequency analysis of harmonics from $r < 0.2$ mm at 20 and 100 Torr pressures, respectively; (d), (e) the attosecond pulses synthesized from harmonics at two pressures, respectively.

叠加 105—195 阶谐波, 得到了宽度为 46 as 的脉冲 (图 6(f)). 说明当气体压强在一定范围变化时, 优化两束近红外激光场和它们的倍频场形成的四色场来驱动氩原子发射的高次谐波经过传播后合成的脉冲仍是单个脉冲, 且谐波辐射仍旧保持无啁啾发射, 可以产生脉冲宽度小于 50 as 的单个脉冲, 说明实验中氩原子发射的阿秒脉冲随气体压强的变化是稳定的.

4 结 论

本文利用遗传算法优化了由两色近红外激光及其相应的二倍频场形成的相干合成脉冲波形, 对通过优化后的组合脉冲驱动氩原子发射的高次谐波及其合成的阿秒脉冲性质进行了研究. 结果表明, 仅使用两色近红外或三色激光驱动, 均不能得到理想的结果. 而用两色近红外激光与它们的倍频场进行优化组合来驱动氩原子, 能够产生超连续高次谐波谱并进而获得单个阿秒脉冲. 通过该四色场的驱动不仅能得到单个的阿秒脉冲, 而且谐波几乎能够以无啁啾的形式发射, 即使经过气体宏观传播后, 仍能得到脉宽达到 40 as 的单个超短脉冲. 我们知道, 通过相干合成的方法虽然已经能够在实验室实现, 但是对于激光的控制仍是比较大的挑战, 需要对各激光束稳定的 CEP 和不同激光束之间的时间延迟进行精准控制, 特别是对于多于两束合成更加困难, 而本文使用的激光束虽然是由四色激光合成的, 但是实际上只要对两束红外光的相干叠加实现精准控制就能够实现, 另外两束则是它们的倍频场, 可以通过红外激光经过非线性光学晶体获得, 并且使用的近红外光不论是 800 nm 激光, 还是波长较长的 1200 nm 激光在实验室都比较容易实现. 同时, 在本文的研究方案中, 所使用的其他激光和实验参数都是能够在实验室中比较容易实现的, 例如, 激光的脉宽都大于 15 fs, 所收集的高次谐波中心能量不超过 200 eV, 气体的压强、厚度等参数均是目前实验室常用的条件. 因此, 本文所提方案在操作性上相对容易, 在目前条件下, 借助于实验室光场波形合成和整形技术^[14,15,53,54], 本文的结果有望得到相关实验的验证.

参考文献

[1] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163

- [2] Cousin S L, Silva F, Teichmann S, Hemmer M, Buades B, Biegert J 2014 *Opt. Lett.* **39** 5383
- [3] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Alisauskas S, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [4] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901
- [5] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [6] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C 2001 *Nature* **414** 509
- [7] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [8] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [9] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [10] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquita A L, Goulikson E M, Attwood D T, Kienberger R 2008 *Science* **320** 1614
- [11] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [12] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [13] Kim K T, Zhang C, Ruchon T, Hergott J F, Auguste T, Villeneuve D M 2013 *Nat. Photonics* **7** 651
- [14] Fang S B, Wei Z Y 2019 *Acta Opt. Sin.* **39** 0126006 (in Chinese) [方少波, 魏志义 2019 光学学报 **39** 0126006]
- [15] Yang Y D, Wei Z Y 2022 *Acta Photonica Sinica* **51** 0151109 (in Chinese) [杨煜东, 魏志义 2022 光子学报 **51** 0151109]
- [16] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [17] Li J, Ren X M, Yin Y C, Zhao K, Chew A, Cunningham E, Wang Y, Hu S Y, Wu Y, Chini M, Chang Z H 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [18] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [19] Wang X W, Wang L, Xiao F, Zhang D W, Lu Z H, Yuan J M, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [20] Lan P F, Lu P X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 847 (in Chinese) [兰鹏飞, 陆培祥 2021 科学通报 **66** 847]
- [21] Yuan H, Cao H B, Wang H S, Liu X, Sun X W, Wang Y S, Zhao W, Fu Y X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 878 (in Chinese) [袁浩, 曹华保, 王虎山, 刘鑫, 孙先伟, 王屹山, 赵卫, 付玉喜 2021 科学通报 **66** 878]
- [22] Wang G L, Zhou L H, Zhao S F, Zhou X X 2016 *Commun. Theor. Phys.* **65** 601
- [23] Jin C, Wang G L, Wei H, Le A T, Lin C D 2014 *Nat. Commun.* **5** 4003
- [24] Zeng Z N, Li R X, Xie X H, Xu Z Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4 (in Chinese) [曾志男, 李儒新, 谢新华, 徐至展 2004 物理学报 **53** 4]
- [25] Zeng Z, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [26] Lan P, Lu P, Cao W, Li Y, Wang X 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402
- [27] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nat. Photonics* **5** 655
- [28] Du H C, Wang X S, Hu B T 2011 *Chin. Phys. B* **20** 084206
- [29] Ge X L, Xia C L, Liu X S 2012 *Laser Phys.* **22** 1704
- [30] Qin Y F, Guo F M, Li S Y, Yang Y J, Chen G 2014 *Chin. Phys. B* **23** 093205
- [31] Liu S N, Chen G, Meng J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 14 (in Chinese) [刘胜男, 陈高, 孟健 2012 物理学报 **61** 14]
- [32] Yang K, Du J X, Wang G L, Jiao Z H, Zhao S F, Zhou X X 2022 *J. Opt. Soc. Am. B* **39** 3
- [33] Pan Y, Guo F, Jin C, Yang Y J, Ding D J 2019 *Phys. Rev. A* **99** 033411

- [34] Wang J, Chen G, Li S Y, Ding D J, Chen J G, Guo F M, Yang Y J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033848
- [35] Falcao-Filho E L, Lai C J, Hong K H, Gkortsas V M, Huang S W, Chen L J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 061107
- [36] Hadrich S, Klenke A, Rothhardt J, Krebs M, Hoffmann A, Pronin O, Tunnermann A 2014 *Nat. Photonics* **8** 779
- [37] Jin C, Le A T, Lin C D 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023411
- [38] Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, Wheeler J, Dimauro L F 2008 *Nat. Phys.* **4** 386
- [39] Wang G L, Dong X M, Zhao S F, Zhou X X 2016 *Chin. Sci. Bull.* **61** 1808 (in Chinese) [王国利, 董小敏, 赵松峰, 周效信 2016 *科学通报* **61** 1808]
- [40] Hong K H, Lai C J, Gkortsas V M, Huang S W, Moses J, Granados E, Kartner F X 2012 *Phys. Rev. A* **86** 043412
- [41] Chipperfield L E, Robinson J S, Tisch J W G, Marangos J P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 063003
- [42] Balogh E, Bódi B, Tosa V, Goulielmakis E, Varjú K, Dombi P 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023855
- [43] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, Huillier L, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [44] Lewenstein M, Salieres P, Huillier A L 1995 *Phys. Rev. A* **52** 4747
- [45] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP* **64** 1191
- [46] Tosa V, Kim H, Kim I, Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **71** 063807
- [47] Gaarde M B, Tate J L, Schafer K J 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 132001
- [48] He L, Yuan G, Wang K, Hua W, Yu C, Jin C 2019 *Photonics Res.* **7** 12
- [49] Wirth A, Hassan M Th, Grguras I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 195
- [50] Yang Y, Mainz R E, Rossi G M, Scheiba F, Silva-Toledo M A, Keathley P D, Kartner F X 2021 *Nat. Commun.* **12** 6641
- [51] Du J X, Wang G L, Jiao Z H, Zhao S F, Zhou X X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 949 (in Chinese) [杜进旭, 王国利, 焦志宏, 赵松峰, 周效信 2021 *科学通报* **66** 949]
- [52] Jin C, Hong K H, Lin C D 2016 *Sci. Rep.* **6** 38165
- [53] Xue B, Tamaru Y, Fu Y, Yuan H, Lan P F, Mucke O D, Suda A, Midorikawa K, Takahashi E J 2021 *Ultrafast Science* **1** 13
- [54] Huang P, Fang S B, Gao Y T, Zhao K, Hou X, Wei Z Y 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 031102

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields*

Du Jin-Xu¹⁾ Wang Guo-Li^{1)†} Li Xiao-Yong²⁾ Zhou Xiao-Xin¹⁾³⁾

1) (*College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China*)

2) (*College of Electrical Engineering, Northwest University for Nationalities, Lanzhou 730030, China*)

3) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics,*

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 11 July 2022; revised manuscript received 5 August 2022)

Abstract

With the rapid development of laser technology, it is possible to control optical waveforms by coherent superposition of electric fields with multiple color components, which creates conditions for generating the ultra-short isolated attosecond pulses (IAP). Based on the strong-field approximation theory, this work focuses on the IAP generated by the optimized multicolor field synthesized by two fundamental near-infrared lasers and their second harmonic fields. The results show that by applying frequency-doubled pulses to the near-infrared laser fields and optimizing the laser parameters, the emission properties of high order harmonics from single atom can be greatly improved, and the nearly attochirp-free harmonic emission can be realized within a certain energy range. As a result, shorter IAPs are obtained. With the consideration of the macroscopic propagation effect of gas, the IAP with a pulse width up to 40 as is generated under appropriate experimental conditions. Finally, the effects of gas pressure on the properties of the high-order harmonic and attosecond pulses are also investigated. This study provides useful theoretical guidance for generating ultra-short IAPs with near-infrared laser pulses in experiment.

Keywords: high-order harmonic generation, isolated attosecond pulse, optimization of laser waveform, macroscopic propagation

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: [10.7498/aps.71.20221375](https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11864037, 91850209, 11964033).

† Corresponding author. E-mail: wanggl@nwnu.edu.cn



优化双色近红外激光及其二次谐波场驱动原子产生孤立阿秒脉冲

杜进旭 王国利 李小勇 周效信

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields

Du Jin-Xu Wang Guo-Li Li Xiao-Yong Zhou Xiao-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233207 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221375

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

非对称波形激光驱动的氢原子高次谐波频移及控制

Frequency shift and control of high-order harmonics of H atom driven by an asymmetric laser pulse

物理学报. 2022, 71(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212146>

专题: 阿秒物理

中红外激光场下阈上电离能谱中的低能结构*

肖智磊¹⁾ 全威^{2)†} 许松坡²⁾ 柳晓军²⁾ 魏政荣^{1)‡} 陈京^{3)††}

1) (湖北大学物理学院, 武汉 430062)

2) (中国科学院精密测量科学与技术创新研究院, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

3) (北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100088)

(2022年8月10日收到; 2022年11月2日收到修改稿)

强激光诱导原子阈上电离中的低能结构 (low-energy structure, LES) 是当前强场领域的研究热点, 其背后的动力学过程引起了广泛讨论. 本文基于半经典模型、SCTS (semi-classical two-step) 量子轨道模型和数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 方法, 研究了中红外激光场下 Xe 原子阈上电离中的 LES 随激光脉冲宽度的依赖. 发现 LES 随脉冲宽度的减小向更低能量方向移动. 分析表明: 长脉宽条件下, 能谱中的多峰结构 (LES n) 与电子前向散射的阶次 n 及电子初始横向动量密切相关, 而极低能结构 (very-low-energy structure, VLES) 主要由更高阶次前向散射的电子轨道贡献; 少周期脉冲条件下, LES 峰值位置随载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 的移动可归因于激光场矢势和离子实库仑势的共同作用随 CEP 的变化, 其中库仑势导致的电子聚束效应是 LES 峰形成的主要原因.

关键词: 阈上电离, 低能结构, 载波包络相位

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.71.20221609

1 引言

强激光场下原子分子的电离动力学是近几十年来强场领域关注的重要问题之一. 基于 Keldysh 理论, 阈上电离 (above-threshold ionization, ATI) 可根据 Keldysh 参数 ($\gamma = \frac{\omega}{E_0} \sqrt{2I_p}$) 的大小划分为多光子电离 ($\gamma \gg 1$) 和隧穿电离 ($\gamma \ll 1$) 两种过程^[1]. 当激光波长较短、光强较弱时, 以多光子电离主导; 当波长较长、光强较强时, 主要以隧穿电离主导. 在隧穿电离区域, 电子动力学过程可用重散射模型来描述^[2,3]: 首先, 在激光场作用下势垒的一侧被压低, 导致原子最外层电子通过隧穿成

为自由电子; 然后, 隧穿电子在激光场作用下演化; 最后, 部分电子有可能在激光场反向时回到离子实附近, 并与之发生碰撞. 电子与离子实可能发生弹性碰撞、非弹性碰撞或与离子实复合, 进而产生一系列高阶非线性现象, 如高阶阈上电离 (high-order above-threshold ionization, HATI)^[4,5]、非顺序双电离 (nonsequential double ionization, NSDI)^[6-8]、高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG)^[9,10]、里德伯态激发 (Rydberg states excitation, RSE)^[11-13] 等.

电离阈值附近丰富的电子动力学过程引起了广泛关注. 2009年, Blaga 等^[14] 和 Quan 等^[15] 各自独立地发现中红外激光场下原子阈上电离能谱

* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0307700)、国家自然科学基金 (批准号: 11834015, 11974383, 12074109, 12104465) 和中国博士后科学基金 (批准号: 2022M713219) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: charlywing@wipm.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: weizhengrong@hubu.edu.cn

†† 通信作者. E-mail: chen_jing@iapcm.ac.cn

的低能量区域出现一个峰状结构, 即 LES. 不仅如此, Quan 等^[15]还发现在更低能位置存在一个极低能结构 (very-low-energy structure, VLES). 随后几年里, 陆续涌现了一系列工作. 2012 年, Wu 等^[16]实验发现一维离子动量谱中的 LES 表现为关于动量零点对称的双峰结构 (double-hump structure, DHS). 2013 年, Guo 等^[17]发现考虑基态原子布居随电离的消耗后, S-Matrix 理论可重现能谱中的 LES, 并将 LES 归因于长程库仑势的作用. 事实上, 研究发现库仑势效应不仅会导致非顺序双电离过程中“膝盖结构”^[18]、“手指结构”^[19]的形成, 而且对光电子动量谱出现 LES、VLES、以及零能结构^[20,21]也扮演非常重要的角色^[22,23]. 2014 年研究人员发现能谱分布中的 LES 实际是由一系列分立的小峰组成, 这些小峰与电子在库仑势作用下多次返回到离子实附近并与其发生前向散射的过程有关^[22,24]. 研究者^[25–27]发现不同阶次的 LES 结构与电子重散射次数有关且 LES1 大概位于 $0.1 U_p$ 处, $U_p = \frac{E_0^2}{4\omega^2}$ 为有质动力能, E_0 和 ω 分别为激光电场振幅和频率, 并且强烈依赖于光强和波长.

尽管研究者已经对光电子能谱中 LES 和 VLES 结构开展了大量研究, 但主要集中在长脉宽激光场中, 少周期激光场条件下的 LES 和 VLES 还研究较少. 最近的实验研究发现激光脉冲宽度变化会使得 LES 的位置发生偏移, 在少周期激光场下 LES 对应能量更低^[28,29], 但该现象背后的物理机制, 尤其是高阶的 LES 小峰对脉冲宽度依赖的机制, 目前尚未研究清楚.

基于此, 本工作利用半经典模型、SCTS (semi-classical two-step) 量子轨道模型和数值求解含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE) 方法系统研究了中红外激光场下 Xe 原子阈上电离中的 LES 随激光脉冲宽度的依赖. 理论模拟发现 LES 的位置随脉冲宽度减小而向更低能量方向移动. 分析表明, 长脉宽条件下, 能谱中出现的多峰结构 (LES $_n$) 与电子前向散射的阶次 n 以及电子初始横向动量均密切相关. 而 VLES 主要由更高阶次前向散射的电子轨道贡献; 少周期脉冲条件下, LES 峰值能量随 CEP 的移动主要源于激光场矢势和离子实库仑势的共同作用随 CEP 的变化, 而 LES1 致的电子聚束效应是 LES 峰形成的主要原因.

2 理论方法

使用三维半经典方法模拟原子与强激光场的相互作用. 下面介绍该方法的主要步骤 (注: 本文采用原子单位制 a.u.).

首先, 电子以一定概率从库仑场与激光电场形成的联合势垒中发生隧穿; 隧穿后的连续态电子在强激光场中的运动可用牛顿运动方程来描述. 电子隧穿时刻的位置可由电子在电场 E 中的薛定谔方程求出^[30]:

$$-I_p \psi = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} + V(r, E) \right] \psi, \quad (1)$$

其中, $V(r, E) = -\frac{1}{r} + Ez$, 激光偏振方向在 z 方向. 令 $x = \sqrt{\xi\eta} \cos \phi$, $y = \sqrt{\xi\eta} \sin \phi$, $z = (\xi - \eta)/2$, 代入 (1) 式, 即可得到抛物坐标系中的一维薛定谔方程:

$$\frac{d^2\psi}{d\eta^2} + \left(\frac{I_p}{2} + \frac{1}{2\eta} + \frac{1}{4\eta^2} + \frac{E\eta}{4} \right) \psi = 0. \quad (2)$$

这里需要考察能量为 $K = -I_p/4$ 的电子从有效势 $U(\eta) = -\frac{1}{4\eta} - \frac{1}{8\eta^2} - \frac{E\eta}{8}$ 隧穿的过程, 求解方程 $K = U(\eta)$ 可确定电子的隧穿出口^[31].

线偏振激光场下电子的初始位置和动量在直角坐标系下分别为: $x_0 = y_0 = 0$, $z_0 = -\frac{1}{2}\eta_0$ 和 $v_{x0} = v_{\text{per}} \cos \theta$, $v_{y0} = v_{\text{per}} \sin \theta$, $v_{z0} = 0$, θ 为 v_{per} 与 x 轴的夹角.

这里采用 Delone 等^[31]得到的线偏振激光场下原子价电子隧穿电离时的电子初始横向动量分布:

$$w(v_{\text{per}}) = w(0) \exp \left[-v_{\text{per}}^2 (2I_p)^{1/2} / |E| \right], \quad (3)$$

其中 $w(0) = |v_{\text{per}}| (2I_p)^{1/2} / (|E|\pi)$ 为归一化系数. 在线偏振激光场下, 电子初始纵向动量的大小相对于末态动量可忽略, 将其取为 0. 每条电子轨道的权重可表示为

$$\begin{aligned} W &= w_{\text{ADK}} w(1), \\ w_{\text{ADK}} &= \frac{4(2I_p)^2}{|E|} \exp \left[-2(2I_p)^{3/2} / (3|E|) \right], \\ w(1) &= \frac{|v_{\text{per}}| (2I_p)^{1/2}}{|E|\pi} \exp \left[-v_{\text{per}}^2 (2I_p)^{1/2} / |E| \right]. \end{aligned} \quad (4)$$

电子通过隧穿成为自由电子之后的演化规律遵循牛顿运动方程,

$$\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} = -\mathbf{E}(t) - \nabla V, \quad (5)$$

其中, $\mathbf{E}(t) = (0, 0, F(t))$ 是线偏振激光场, $F(t) = a(t)F_0 \cos(\omega t + \varphi_0)$, F_0 为电场峰值强度, φ_0 为载波-包络相位 (carrier envelope phase, CEP),

$$a(t) = \begin{cases} 0, & t < 0, \\ \sin^2\left(\frac{\pi t}{NT}\right), & 0 \leq t \leq NT, \\ 0, & t > NT, \end{cases} \quad (6)$$

其中 T 为激光光学周期, N 为激光脉冲内光学振荡周期数.

采用四阶-龙格库塔算法求解演化方程, 并将激光脉冲结束时的电子总能量作为判据选择电离轨道. 在计算中, 将激光场可能的载波-包络相位进行 24 等分 ($\Delta\varphi_{\text{CEP}} = 15^\circ$), 每个 CEP 等分下计算 5×10^5 条轨道. 当时间演化到激光脉冲结束时, 得到电子的坐标和动量, 并结合开普勒定律解析求解, 得到电子在无穷远位置的末态动量 [32].

3 分析讨论

利用半经典模型计算得到 2000 nm 波长条件

下 Xe 原子在长脉宽 ($20T$) 和少周期 ($4T$) 线偏振激光场下的光电子能量谱 (如图 1(a)(b) 所示) 和二维动量分布 (如图 1(c)(d) 所示), 激光强度为 $0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 从光电子能谱中可以看到, 长脉宽条件下能谱中出现了 4 个小峰, 分别为 LES1, LES2, LES3 和 VLES, 相应谱峰的能量分别为 2.25, 0.96, 0.56 和 0.06 eV; 而在少周期激光场作用下光电子能谱中仅出现了 1 个峰 (LES1), 且谱峰能量为 0.42 eV. 通过对比可知, 随着激光脉冲宽度的减小, LES1 的位置会往更低能量方向移动, 少周期激光场下 LES2, LES3 和 VLES 均消失. 由于构成低能结构的电子出射角大都在 0° (激光偏振方向) 附近, 这里选取电子末态出射角与 z 轴的夹角为 $\pm 5^\circ$ 度范围内的电子轨道. 为在二维动量谱中分辨出上述一系列低能结构, 对二维动量谱的纵轴取对数, 如图 1(c), (d) 所示. 在二维动量谱的零动量附近出现一系列峰状分布, 对应低能结构 LES 和极低能结构 VLES (黑色箭头标注处) 和零动量处的零能结构 ZES [21]. 本文主要关注 LES 和 VLES, 对 ZES 不做过多讨论.

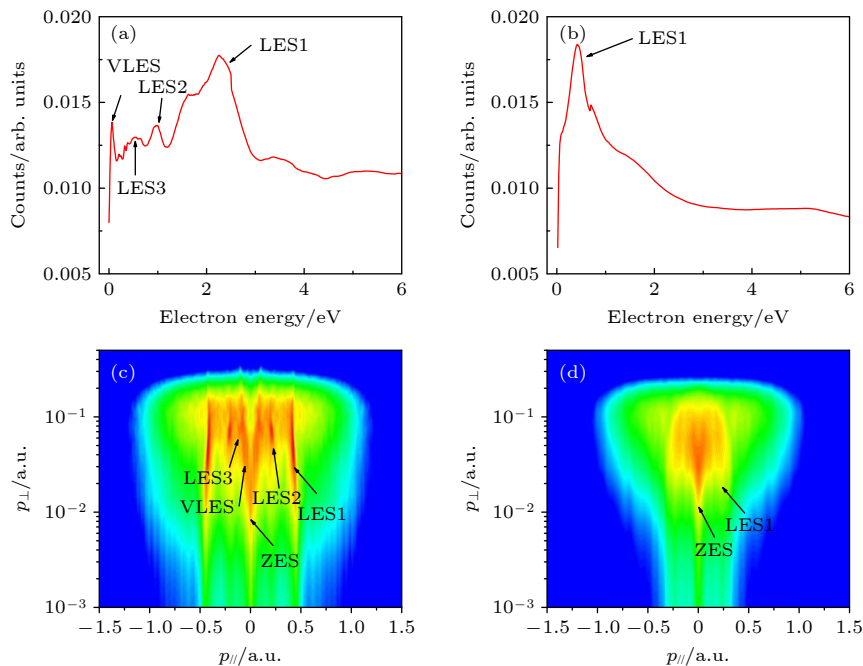


图 1 计算得到 CEP 平均后 Xe 原子在光强 $0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 波长 2000 nm 线偏振激光场下的光电子能谱, 其中激光脉冲宽度分别为 (a) $20T$ 和 (b) $4T$; (c), (d) 光电子二维动量分布 (纵轴为对数坐标). 第一、二、三阶低能结构 (即 LES1, LES2, LES3)、极低低能结构 (VLES) 和零能结构 (ZES) 在图中都用箭头标出

Fig. 1. The calculated CEP-averaged photoelectron energy structures (PES) of Xe atom with laser intensity of $0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, wavelength of 2000 nm and the laser pulse durations of 20-cycles (a) and 4-cycles (b), respectively; (c), (d) the corresponding photoelectron momentum distributions with p_{\perp} on logarithmic scales. The first-, second- and third-order LESs (LES1, LES2, LES3) and the very low energy structure (VLES) and zero energy structure (ZES) are indicated by arrows in all panels.

随后采用考虑电子轨道相位的 SCTS 量子轨道模型^[33,34]和 TDSE 方法^[35,36]分别模拟了长脉宽和少周期激光场条件下光电子能量和动量分布. 可以发现, 考虑电子轨道相位后可在动量谱中看到显著的干涉结构(如图 2(c) 所示). 在二维动量谱中选取立体出射角在 $\pm 5^\circ$ 范围的光电子进行统计获得能量谱, 发现无论是长脉宽还是少周期, 光电子能量谱中依然能看到清晰的低能结构(如图 2(a) 所示), 且能量峰的位置与半经典模型计算结果基本一致. 此外, TDSE 方法获得的光电子能量谱中呈现与半经典模型定性一致的低能峰结构, 且随激光脉冲宽度的演化规律基本与半经典模型一致(如图 2(b) 所示). 通过对比 3 种理论方法计算结果, 发现考虑电子量子轨道之间的干涉不会影响低能结构的能量峰位置.

为理解不同低能结构峰形成背后的物理机制, 分别统计了长脉宽激光场下 LES_n 和 VLES 结构对应光电子前向散射次数的分布, 如图 3 所示. 电子返回离子实附近并穿过以核为中心、半径为 15 a.u. 球面时, 可看作电子发生 1 次前向散射, 将电子在第 $n+1$ 次返回核附近时发生的前向散射称为第 n 次前向散射. 由图 3(a) 可知, LES_1 结构对

应的所有光电子轨道中单次前向散射占主导, 大于 1 次散射次数的轨道贡献均比较小. 类似地分析了 LES_2 和 LES_3 谱峰对应电子前向散射次数分布(如图 3(b), (c) 所示). 可见, 贡献最大的分别为 2 次和 3 次前向散射的电子轨道. 对于 VLES 结构, 第 4 次前向散射电子轨道贡献最大, 即更高阶前向散射过程对其产生主要贡献. 已发表关于 VLES 结构产生机制的文章中未见类似结果报道. 由此可知, 某一 LES_n 峰的幅度及能量与其对应的特定次数的电子前向散射过程密切相关, 而 VLES 则可认为是更高阶的 LES , 且不同散射次数的电子轨道共同对其产生贡献. 由图 1(b), (d) 可知, 由于周期数太少, 少周期激光场下电子最多只发生 1 次前向散射过程, 所以在能谱中只出现了一个 LES_1 能量峰.

为解释不同阶次的低能结构 LES_n 恰好对应不同前向散射次数电子这一现象, 分析了 LES_1 和 LES_2 电子的电离时刻 t_0 和最后一次发生前向散射的时刻 t_r 的概率分布(如图 4(a) 所示). 发现 LES_1 和 LES_2 均在激光电场峰值附近发生电离, 且 LES_2 的电离时刻相较于 LES_1 更加贴近电场峰值, 而 LES_1 的电离时刻位于在激光电场峰值之

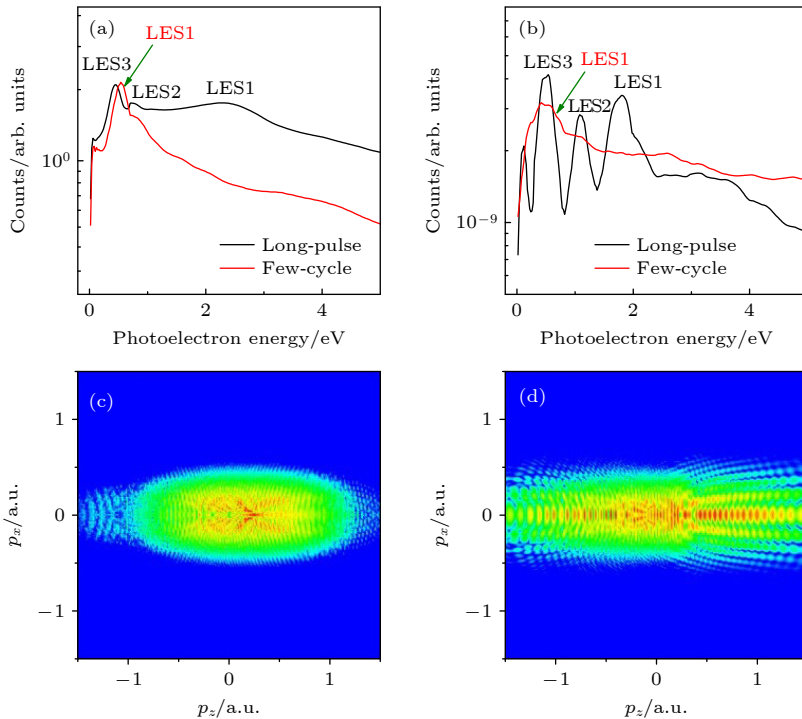


图 2 使用 SCTS 量子轨道模型 (a) 和 TDSE 方法 (b) 计算得到 Xe 原子在不同脉宽线偏振激光场下的光电子能量谱; SCTS 量子轨道模型 (c) 和 TDSE 方法 (d) 少周期激光场中二维光电子动量分布, 其中激光脉冲的 CEP = 0

Fig. 2. The calculated PES of Xe atom under different laser pulse durations with SCTS model (a) and TDSE (b), respectively; (c), (d) the corresponding photoelectron momentum distributions under few-cycle laser fields with CEP = 0.

后的下降沿. 对比前向散射时刻 t_r 分布发现, LES1 结果对应电子轨道主要在 $1.6T$ 处发生第一次前向散射, 而 LES2 对应电子轨道主要在 $2.58T$ 处发生第二次前向散射, 而这些轨道在第一次前向散射返回时刻 ($1.68T$ 处) 的贡献非常小, 该结果与图 3(a), (b) 中的散射次数概率分布一致. 进一步分析 LES1 和 LES2 的 t_r 分布中最大概率的两个峰对应的电子初始横向动量 p_0 分布, 如图 4(b) 所示. 通过对比发现, LES2 电子相较于 LES1 具有更大范围的初始横向动量, 且最大概率处的电子横向动量更大, 可见电子的初始横向动量在其中扮演着非

常重要的角色. 在激光场的演化过程中, 隧穿电子在激光场反向时有一定概率返回到离子实附近, 在隧穿后的前几个光学周期电子都在接近离子实的范围 (< 100 a.u.) 内运动, 所以库仑势对于电子横向的聚焦效应将不可忽视, 且其对不同横向动量电子的聚焦效果存在差异. 由于 LES1 电子初始横向动量较小, 所以只需 $1.6T$ 的演化时间就可以将电子聚焦至可以发生散射 (即软碰撞) 的程度; 对于 LES2 电子, 由于初始的横向动量较大, 则需要花费更多的演化时间, 在电子下一次返回离子实时才能达到发生前向散射的效果.

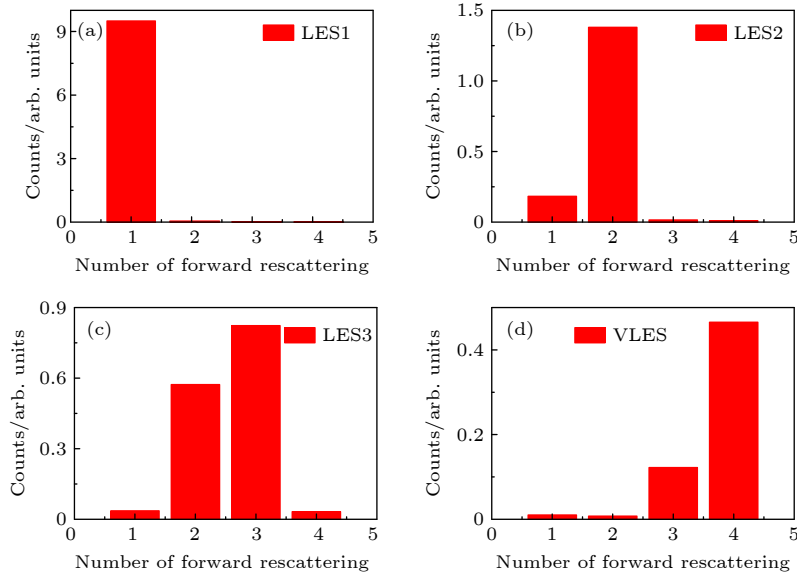


图 3 长脉冲激光场下 LES n (a)—(c) 与 VLES (d) 结构对应的光电子产量随前向散射次数的分布

Fig. 3. The distributions of photoelectron yields of the LES1 (a), LES2 (b), LES3 (c) and VLES (d) corresponding to the forward scattering times in multi-cycle laser field.

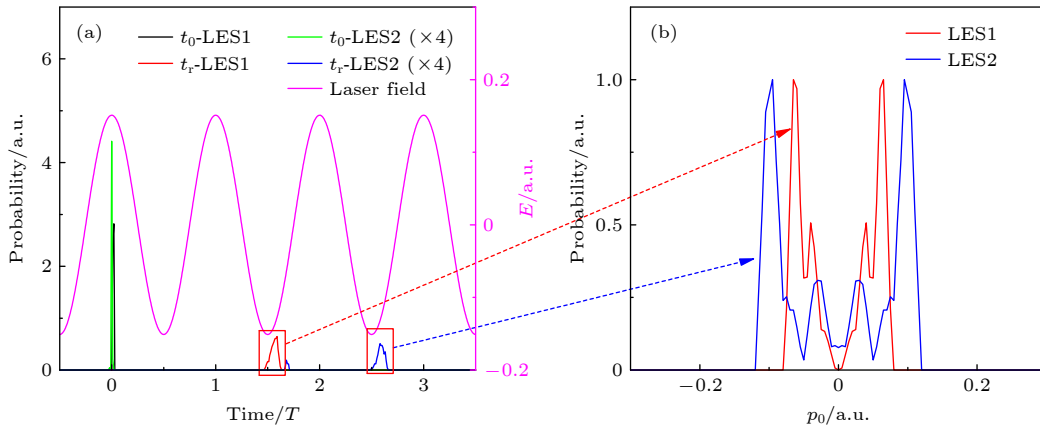


图 4 (a) 不同阶次 LES n ($n = 1, 2$) 对应电子电离时刻 t_0 和最后一次发生前向散射时刻 t_r 的概率分布, 紫色线为激光电场; (b) LES1 第一次前向散射以及 LES2 第二次前向散射对应的电子初始横向动量分布

Fig. 4. (a) The distributions of tunneling instant t_0 and last forward scattering instant t_r for LES1 and LES2, respectively, the laser field is shown by the purple line; (b) the initial transverse momentum distributions of the first forward scattering photoelectron trajectory in LES1 and the second forward scattering photoelectron trajectory in LES2.

为给出更加清晰的物理图像, 分别分析了长脉宽激光场下 LES1 和 LES2 的典型电子轨道 (如图 5 所示). 由空间演化轨迹 (左侧所示) 可知, LES1 和 LES2 典型电子轨道分别在离子实附近发生了 1 次和 2 次的前向散射. 在电子动量随时间演化轨迹 (右侧所示) 中可以更清晰地看到, 每演化一个光学周期时电子的横向动量都会由于离子实的散射出现一次显著的减小. 图 5(b), (d) 中红色箭头分别标示出 LES1 电子第 1 次前向散射和 LES2 电子第 2 次前向散射时刻. 前向散射过程主要影响电子的横向动量, 平行动量并未出现显著动量突变. 通过分析典型电子轨道的演化为 LES n 的出现提供了清晰的物理图像, 即隧穿电子在激光场作用下会与离子实发生多次前向散射过程, 每一阶低能结构 LES n 主要由相应发生 n 次前向散射的电子轨道贡献.

在图 1 中可看到, 少周期激光场下电子能谱中 LES1 的能量相比长脉宽发生显著变化, 为阐明该现象背后的物理机制, 在图 1(b) 中 CEP 平均的少周期激光场计算结果基础上, 进一步分析了不同 CEP 对少周期激光场下光电子能谱影响, 如图 6(a)—(d) 所示. 可以看到, 光电子能谱强烈依赖少周期激光场的 CEP. 当 CEP = 0.25 π 时, LES1

的能量最高, 为 0.54 eV. 当 CEP = 0.75 π 时 LES1 已经无法有效分辨, 只能在能谱中分辨出 ZES. 而当 CEP = 0 和 0.5 π 时, LES1 能量位置分别为 0.32 eV 和 0.45 eV. 经过 CEP 平均之后获得最终处于 0.42 eV 的 LES1. 为理解背后的物理机制, 分析了少周期不同 CEP 下的 LES 以及长脉宽激光场下 LES1 对应的前向散射电子在电离时刻的激光场矢势 $A(t_0)$ 分布 (如图 6(e) 所示). 由矢势分布可知, 前向散射电子的矢势分布大致与能谱结构中 LES 峰的位置对应, 如 CEP = 0, 0.25 π , 0.5 π , 0.75 π 时 LES 电子矢势峰值分别为 -0.16 a.u., 0.22 a.u., 0.18 a.u. 和 0.08 a.u.. 通过矢势计算得到电子在激光场中获得的能量总是略大于 LES 谱峰的能量, 这是由于库仑势的作用使得光电子能量发生衰减 (衰减幅度约为 10%—20%). 此外, 长脉宽下 LES1 前向散射电子的矢势 (~ 0.4 a.u.) 与能谱中 LES1 位置几乎一致, 可见长脉宽条件下库仑势对 LES 结构的影响更小. 图 6(f) 及插图表示长脉宽和少周期激光场结束时 LES1 前向散射电子的电离产率关于库仑势大小和电子与离子实距离的分布. 对应 CEP = 0, 0.25 π 两种情况, 少周期激光场结束时电子分别位于核外 40 a.u. 和 60 a.u. 处, 而长脉宽激光场条件下, 相应的距离为 1100 a.u. 从对应

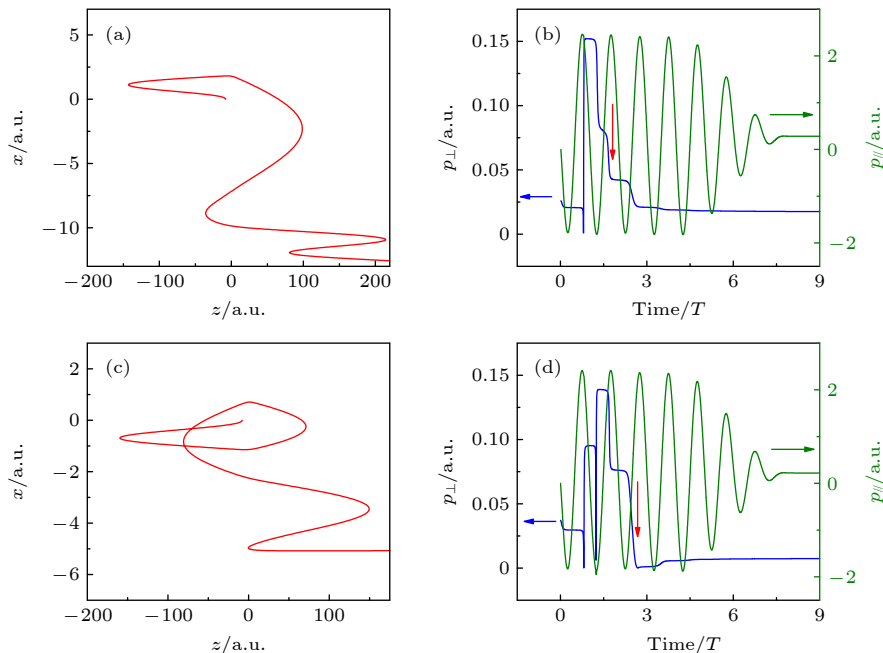


图 5 (a),(c) 长脉冲激光场下光电子能谱中 LES1, LES2 结构对应的典型轨道; (b),(d) LES1 和 LES2 对应典型光电子轨道的横向动量、平行动量随时间的演化

Fig. 5. The typical orbitals corresponding to the LES1 (a) and LES2 (c) in the photoelectron spectra in multi-cycle laser field; the corresponding temporal evolution of transverse momentum (p_{\perp}) and parallel momentum (p_{\parallel}) of the two typical orbits of LES1 (b) and LES2 (d), respectively.

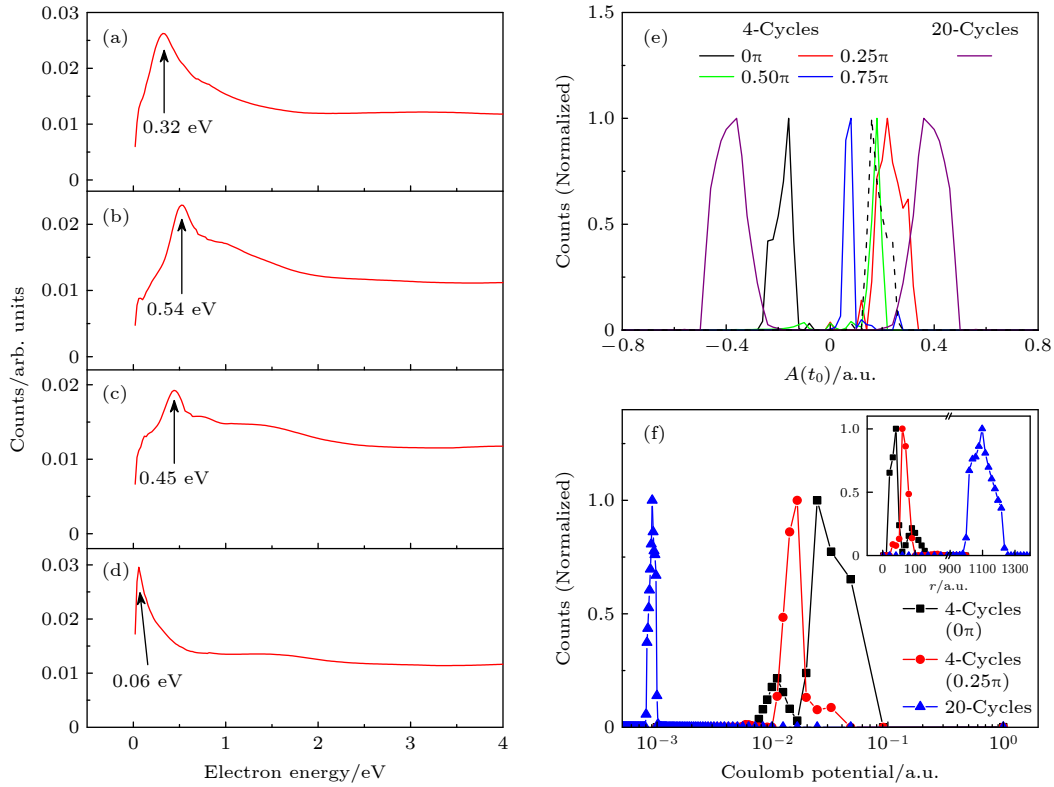


图 6 (a)–(d) 少周期激光场下光电子能谱随 CEP 的依赖, 对应 CEP 从上至下分别为 0π , 0.25π , 0.5π , 0.75π ; (e) 少周期激光场中不同 CEP 条件下 LES 电子前向散射轨道电离时刻激光场矢势 $A(t_0)$ 分布和长脉宽激光场条件下 LES1 电子前向散射电离时刻激光场矢势 $A(t_0)$ 分布, 其中黑色虚线为 0π 时矢势在正方向的镜像; (f) 少周期和长脉宽激光场结束时刻电离产率关于库仑势大小的分布, 插图为电离产率关于电子与离子实距离的分布

Fig. 6. (a)–(d) The distributions of PES with different CEPs in few-cycle laser field, the corresponding CEPs are 0π , 0.25π , 0.5π , 0.75π from top to bottom; (e) the ionization yields with respect to the vector potential of rescattering photoelectron trajectories relevant to the LES at these CEPs in the case of the few-cycle laser pulse case and also the corresponding data of the photoelectron trajectories relevant to the LES1 in the multi-cycle pulse case; (f) the ionization yields with respect to the strength of the Coulomb potential when laser field ends, the inset shows the ionization yields with respect to the distance between the photoelectron and the core.

的库仑势分布也能明显看出, 少周期激光场下电子库仑势大小约为长脉宽激光场时的 10—20 倍. 因此, 脉冲宽度变化以及少周期下 CEP 变化导致的 LES1 峰值位置移动来自于激光场矢势和离子实库仑势的共同作用, 其中电子能量获取主要来自于激光场矢势, 而库仑势效应对于低能电子动力学过程的影响将在图 7 中进行分析.

最后分析少周期 CEP = 0 时 LES 前向散射电子中不同初始条件的 4 条轨道正则动量随时间的演化情况 (如图 7(a) 所示). 需要指出的是, 这里的正则动量是去除激光场矢势作用的结果, 实线为半经典模型下考虑库仑势作用时的结果, 虚线为 Simpleman 模型下的结果. 由图可知, 电离时刻为 $1T$, $1.5T$, $2.0T$ 附近的电子轨道随激光场演化后动量均趋于一致, 而 Simpleman 模型下的动量始终保持恒定. 这一差别与电子在演化过程中的库仑势

效应有关, 由于库仑势的影响, 电子会在演化一定时间后返回离子实并发生前向散射, 而电子横向动量在前向散射过程中显著减小, 导致大量前向散射电子轨道产生聚束 (bunching) 现象, 这是 LES 能量峰形成的主要原因. 为理解 CEP 变化导致 LES 峰能量变化背后的物理机制, 分析了 CEP = 0 和 0.25π 时前向散射电子的散射时刻 t_r 和电离时刻 t_0 的分布以及两个时刻相对延时 Δt 的分布 (如图 7(b) 所示). 由插图可知, 当 CEP = 0 时电子 t_0 主要分布在 $1.48T$ 和 $2T$ 两处, 而 t_r 主要分布在 $2.76T$ 和 $3.28T$ 附近, 且 t_r 分布范围更广; 当 CEP = 0.25π 时 t_0 分布于 $1.36T$ 和 $1.88T$ 处, t_r 分布于 $2.72T$ 和 $3.3T$ 附近. 由图 7(b) 中 Δt 分布可知, 两时刻的时间间隔也会随 CEP 的变化而发生移动, 当 CEP = 0 时 $\Delta t = 1.26T$ 处概率最大, 而 CEP = 0.25π 时 $\Delta t = 1.36T$ 时概率最大. 可见 CEP 变化会导致电

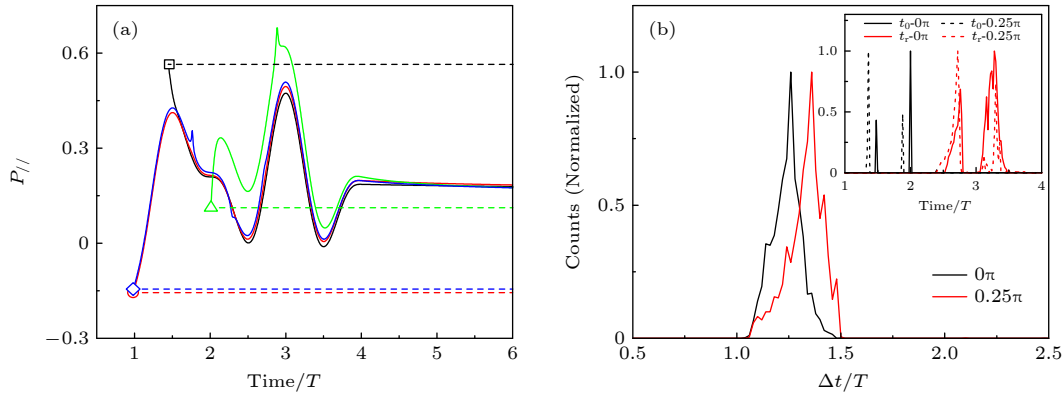


图 7 (a) 少周期 CEP = 0 时不同初始条件的 4 条轨道正则动量随时间的演化情况, 实线为考虑库仑势, 虚线为不考虑库仑势的情况; (b) 少周期 CEP = 0 和 0.25π 时电离概率关于前向散射电子的重散射时刻相较于电离时刻延迟的分布, 插图为两 CEP 条件下电子电离时刻 t_0 和散射时刻 t_r 的概率分布

Fig. 7. (a) Temporal evolution of drift momenta of four trajectories with different initial conditions with (solid line) and without (dotted line) Coulomb potential with CEP = 0; (b) the distribution of the delay time between rescattering time (t_r) and tunneling time (t_0) in few-cycle laser fields with CEP = 0 and 0.25π . The inset shows the t_0 and t_r distributions for the two CEPs.

离时刻与散射时刻均发生变化. 由于电离时刻分布决定了电子在激光场中累积的动量大小, 电子在前向散射时动量减小的程度也与散射时刻的分布有关, 因此 CEP 变化导致的电离时刻的差异以及散射延时的差异是导致发生电子聚束效应时电子动量大小出现差异的主要原因, 从而导致 LES 能量峰的位置发生移动.

4 结 论

本文利用半经典模型、SCTS 量子轨道模型和 TDSE 方法系统研究了中红外激光场下 Xe 原子阈上电离中的 LES 随激光脉冲宽度的依赖. 理论模拟发现 LES 的位置随脉冲宽度的减小而向更低能方向移动. 分析表明, 长脉宽下的 LES $_n$ 结构与电子前向散射的阶次 n 以及电子初始横向动量均密切相关, 初始横向动量越大的电子可更多次返回离子实, 从而发生更高阶次的前向散射, 而 VLES 主要由更高阶次前向散射的电子轨道贡献; 少周期脉冲条件下, LES 峰值位置随 CEP 的移动可主要归因于激光场矢势和离子实库仑势的共同作用随 CEP 的变化, 其中库仑势导致的电子聚束效应是 LES 峰形成的主要原因.

参考文献

[1] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP-USSR* **20** 1307
 [2] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
 [3] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993

Phys. Rev. Lett. **70** 1599
 [4] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
 [5] Yergeau F, Petite G, Agostini P 1986 *J. Phys. B* **19** L663
 [6] Walker B, Sheehy B, DiMauro L F, Agostini P, Schafer K J, Kulander K C 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1227
 [7] L'Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1983 *Phys. Rev. A* **27** 2503
 [8] Hao X L, Bai Y X, Li C, Zhang J Y, Li W D, Yang W F, Liu M Q, Chen J 2022 *Commun. Phys.* **5** 31
 [9] Shore B W, Knight P L 1987 *J. Phys. B* **20** 413
 [10] McPherson A, Gibson G, Jara H 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
 [11] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, Eichmann U, Sandner W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
 [12] Eichmann U, Nubbemeyer T, Rottke H, Sandner W 2009 *Nature* **461** 1261
 [13] Liu M Q, Xu S P, Hu S L, Becker W, Quan W, Liu X J, Chen J 2021 *Optica* **8** 765
 [14] Blaga C I, Catoire F, Colosimo P, Paulus G G, Muller H G, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Nat. Phys.* **5** 335
 [15] Quan W, Lin Z Y, Wu M Y, et al. 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 093001
 [16] Wu C Y, Yang D, Liu Y Q, et al. 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 043001
 [17] Guo L, Han S S, Liu X, Cheng Y, Xu Z Z, Fan J, Chen J, Chen S G, Becker W 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 013001
 [18] Wang Y L, Xu S P, Chen Y J, et al. 2017 *Phys. Rev. A* **95** 063415
 [19] Quan W, Xiao Z L, Chen Y J, Xu S P, Lai X Y, Hua L Q, Gong C, Chen J, Liu X J 2017 *Sci. Sin. Phys. Mech. Astron.* **47** 033007 (in Chinese) [全威, 肖智磊, 陈永菊, 许松坡, 赖炫扬, 华林强, 龚成, 陈京, 柳晓军 2017 *中国科学: 物理 力学 天文学* **47** 033007]
 [20] Xia Q Z, Ye D F, Fu L B, Han X Y, Liu J 2015 *Sci. Rep.* **5** 11473
 [21] Quan W, Hao X L, Chen Y J, et al. 2016 *Sci. Rep.* **6** 27108
 [22] Moller M, Meyer F, Sayler A M, et al. 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023412
 [23] Xu S P, Quan W, Chen Y J, Xiao Z L, Wang Y L, Kang H P, Hua L Q, Gong C, Lai X Y, Liu X J, Hao X L, Hu S L,

- Chen J 2017 *Phys. Rev. A* **95** 063405
- [24] Wolter B, Lemell C, Baudisch M, et al. 2014 *Phys. Rev. A* **90** 063424
- [25] Liu C P, Hatsagortsyan K Z 2011 *J. Phys. B* **44** 095402
- [26] Becker W, Goreslavski S P, Milošević D B, Paulus G G 2014 *J. Phys. B* **47** 204022
- [27] Milošević D B 2016 *J. Phys. B* **49** 175601
- [28] Kästner A, Saalmann U, Rost J M 2012 *J. Phys. B* **45** 074011
- [29] Zhang K, Lai Y, Diesen E, et al. 2016 *Phys. Rev. A* **93** 021403
- [30] Bambi H, Liu J, Chen S G 1997 *Phys. Lett. A* **236** 533
- [31] Delone N B, Krainov V P 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1207
- [32] Shvetsov-Shilovskia N I, Goreslavskia S P, Popruzhenkoa S V 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
- [33] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, et al. 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
- [34] Xiao Z L, Quan W, Yu S G, Lai X Y, Liu X J, Wei Z R, Chen J 2022 *Opt. Express* **30** 14873
- [35] Hermann M R, Fleck, Jr J A 1988 *Phys. Rev. A* **38** 6000
- [36] Yu S G, Lai X Y, Wang Y L, Xu S P, Hua L Q, Quan W, Liu X J 2020 *Phys. Rev. A* **101** 023414

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Low energy structure of above-threshold ionization spectra produced by mid-infrared laser pulses*

Xiao Zhi-Lei¹⁾ Quan Wei^{2)†} Xu Song-Po²⁾ Liu Xiao-Jun²⁾

Wei Zheng-Rong^{1)‡} Chen Jing^{3)††}

1) (*Faculty of Physics, Hubei University, Wuhan 430062, China*)

2) (*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Innovation Academy for Precision Measurement Science and Technology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China*)

3) (*Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China*)

(Received 10 August 2022; revised manuscript received 2 November 2022)

Abstract

The low-energy structure (LES) of above-threshold ionization (ATI) of atoms subjected to an intense laser field is a hot topic in the strong-field atomic physics. The rich physical insights behind LES attract a lot of attention. Based on a semi-classical model, a semi-classical two-step (SCTS) quantum trajectory model and numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE), we study the pulse-duration dependence of LES for Xe atom subjected to a mid-infrared laser field. It is found that the energy of LES becomes lower for shorter pulse duration. Further analysis shows that in the case of multi-cycle laser field, the LES_n structure is closely related to the number of times of forward scattering and the initial transverse momentum. In the case of few-cycle laser pulse, the carrier-envelope phase (CEP) dependence of the peak position of LES is mainly due to the CEP dependence of the influence of both vector-potential of the laser field and the Coulomb potential. In addition, the bunching effect of electrons, caused by Coulomb potential, is the main reason for the formation of LES.

Keywords: above-threshold ionization, low-energy structure, carrier-envelope phase

PACS: 32.80.Rm, 32.80.Fb, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.71.20221609

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFA0307700), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11834015, 11974383, 12074109, 12104465), and the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2022M713219).

† Corresponding author. E-mail: charlywing@wipm.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: weizhengrong@hubu.edu.cn

†† Corresponding author. E-mail: chen_jing@iapcm.ac.cn

中红外激光场下阈上电离能谱中的低能结构

肖智磊 全威 许松坡 柳晓军 魏政荣 陈京

Low energy structure of above-threshold ionization spectra produced by mid-infrared laser pulses

Xiao Zhi-Lei Quan Wei Xu Song-Po Liu Xiao-Jun Wei Zheng-Rong Chen Jing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233208 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221609

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221609>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用双色激光场下阈上电离谱鉴别两种不同分子构型

Identifying two different configurations of the by the direct above-threshold ionization spectrum in two-color laser field

物理学报. 2020, 69(7): 073201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200013>

基于电光晶体马赫-曾德干涉仪的载波包络偏移频率调节方法

Method of adjusting carrier-envelope offset frequency based on electro-optic-crystal Mach-Zehnder interferometer

物理学报. 2022, 71(14): 144203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220147>

利用静电场中光电离效率谱精确确定1,3-二乙氧基苯分子的电离能

Accurate determination of ionization energy of 1,3-diethoxybenzene via photoionization efficiency spectrum in electrostatic field

物理学报. 2021, 70(5): 053301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201273>

应用于宽带中红外激光产生的啁啾周期极化铌酸锂晶体结构设计及数值模拟

Structure design and numerical simulation of chirped periodically polarized lithium niobate crystal for broadband mid-infrared laser generation

物理学报. 2022, 71(13): 134206 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220016>

采用薄靶方法测量低能电子致Al, Ti, Cu, Ag, Au元素K壳层电离截面与L壳层特征X射线产生截面

Measurements of K-shell ionization cross sections and L-shell X-ray production cross sections of Al, Ti, Cu, Ag, and Au thin films by low-energy electron impact

物理学报. 2022, 71(17): 173402 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220162>

高激光损伤阈值Ge-As-S硫系玻璃光纤及中红外超连续谱产生

Ge-As-S chalcogenide glass fiber with high laser damage threshold and mid-infrared supercontinuum generation

物理学报. 2021, 70(4): 047801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201324>

专题: 阿秒物理

NO 分子形状共振阿秒动力学精密测量*

徐一丹¹⁾ 姜雯昱¹⁾ 童继红¹⁾ 韩露露¹⁾ 左子潭¹⁾
许理明²⁾ 官晓春^{1)†} 吴健^{1)‡}

1) (华东师范大学, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 201100)

2) (华东师范大学化学与分子工程学院, 上海 201100)

(2022 年 9 月 4 日收到; 2022 年 9 月 29 日收到修改稿)

形状共振是分子电离散射过程中的一种重要现象, 其阿秒量级的光电离延时的精密测量, 是深入认识形状共振过程及成因的重要基础. 本文使用基于近红外飞秒激光与极紫外阿秒脉冲串的阿秒符合干涉仪, 利用双光子干涉的阿秒拍频重构的探测方法, 对一氧化氮(NO) 分子 4σ 电子的形状共振过程进行研究, 实验测量了分子内有效电离延时对光子能量的依赖关系, 通过对比双光子跃迁延时与单光子跃迁延时, 发现单光子过程的 Wigner 延时是双光子跃迁延时随能量变化的主要原因. 基于单中心展开的量子散射理论计算表明, 在分子形状共振位置的电子电离延时, 主要由连续态中高角动量离心势囚禁的电子决定.

关键词: 分子形状共振, 电子阿秒电离延时, 阿秒符合干涉仪

PACS: 33.20.Xx, 32.80.-t, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221735

1 引言

在光与物质的相互作用中, 当处于基态的中性原子或分子吸收的光子能量大于其电离能时, 中性原子或分子体系会失去电子, 产生正离子碎片及连续态光电子, 为探索微观物质结构及动力学提供重要探测途径. 与飞秒时间尺度原子核波包转动^[1]、分子化学键断裂^[2]、分子内电子-原子核关联^[3] 动力学过程相比, 电子的运动发生在极小的空间尺度与极短的时间尺度 (10^{-18} s) 上, 需要阿秒时间分辨的精密测量手段. 近年来, 聚焦于电子超快动力学的阿秒精密测量技术, 已经被应用于探测原子分子电离延时^[4-7]、化学键断裂^[8]、电荷转移^[9] 等过程.

分子形状共振于 1935 年由 Fermi 等^[10] 首先在人工放射性慢中子捕获实验中发现, 此后, 一直

是物理、化学、生物领域研究的热点问题, 例如放射性核衰变^[11]、超冷碰撞^[12]、低能电子散射^[13,14]、DNA 辐射损伤^[15] 等. 在光致分子电离的过程中, 电子的动力学过程如图 1 所示, 具有一定动能的自由电子被离心势垒短暂捕获, 等效于实验观测到的电子隧穿通过原子核势垒导致的百阿秒量级的电离时间延时. 同时, 在共振能量附近, 分子光电离散射截面出现显著共振增强峰, 上述共振寿命与能量取决于束缚电子的势垒形状, 因此得名“形状共振”, 进一步的研究表明在共振能量点, 出射光电子的角分布不对称参数有明显的下降^[16,17].

近几年, 极紫外阿秒光脉冲产生技术的发展, 极大地推进了阿秒尺度电子极端超快动力学精密测量的实验研究, 例如基于极紫外阿秒脉冲和近红外飞秒脉冲的双光子干涉的阿秒拍频重构 (reconstruction of attosecond beating by interference of

* 国家科技支撑计划 (批准号: 2018YFA0306303, 2019YFA0308300)、国家自然科学基金 (批准号: 12122404, 11974114, 11804098, 11834004, 91950203, 11621404) 和上海市科委科技基金 (批准号: 19560745900, 19JC1412200) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xcgong@lps.ecnu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: jwu@phy.ecnu.edu.cn

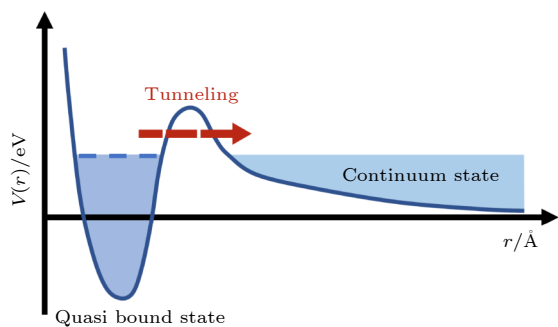


图1 形状共振中电子隧穿过程示意图. 蓝色曲线为电子感受到的随电子到原子核距离 r 变化的离心势场. 电子发生形状共振时, 可被离心势垒短暂束缚, 之后隧穿进入连续态

Fig. 1. Schematic illustration of the electron tunneling process in shape resonance. The blue curve indicates the centrifugal potential of the electron as a function of the distance to the nuclei. During the shape resonance process, the electron is temporally trapped by the centrifugal potential barrier, and then tunnels into the continuum state.

two-photon transitions, RABBIT) [18] 方法可以用于测量形状共振中电子电离的延时动力学. 2016年 Huppert 等 [5] 利用 RABBIT 方法研究了 N_2O 分子的形状共振过程, 测得 \tilde{X}^+ 态与 \tilde{A}^+ 态之间存在 160 as 的光电离延时, 在 21.7—37.2 eV 光子能量范围内存在 σ 对称与 π 对称的形状共振, 其中 σ 对称的形状共振对分子光电离延时有显著影响, 与 \tilde{A}^+ 相关的 σ 共振能量为 28.8 eV, 共振寿命为 114 as, 而与 \tilde{X}^+ 态相关的 σ 共振能量在 25.5 eV, 共振寿命为 97 as [5]. 2020 年, Nandi 等 [4] 利用 RABBIT 方法研究了 N_2 分子 $3\sigma_g^{-1}$ 的形状共振过程, 发现分子振动影响核运动, 使势垒发生微小变化, 造成光电子出射延时改变达 200 as, 证明 Franck-Condon 图像在光电离动力学中的局限性, 即电子跃迁不能当作相对于原子核的瞬时运动. 2021 年 Heck 等 [19] 研究了 CF_4 分子 HOMO 和 HOMO-1 轨道的不对称电离延时, 将这种不对称性的原因追溯到共振时主要有 2—3 个分波占主要贡献. 2022 年 Ahmadi 等 [20] 同样研究了 CF_4 分子, 发现出射光电子所受的分子势取决于发射方向, 不同高度的势垒导致了各向异性的时间延时; CO [17], NO [21,22] 等分子利用阿秒技术的探测工作也陆续开展, 实现了电子隧穿延时的精密测量.

NO 分子中存在多个电子态相关的形状共振过程, 对理解分子形状共振具有重要意义. 1981 年, Wallace 等 [23] 通过理论预测了 NO 分子 σ 光电离通道中的形状共振现象, 并讨论了原子核运动对光

电离截面与光电子角分布等观测值的影响. 近几年, Suzuki 等 [24] 利用 time-energy mapping 表征了 NO 分子的空间电离动力学, 利用 ℓ 分波轨道杂化方法解释了电离动力学中的相位与量子缺陷之间的差异; 高次谐波光谱和强场电离也用于研究 NO 耦合的电子波包, 发现在光子能量 14 eV 附近处, NO 分子的自电离与形状共振的存在极大改变了偶极矩的角度分布 [25]. Veyrinas 等 [26] 利用同步辐射光源, 研究了光子能量在 23—33 eV 范围内 NO^+ $C^3\Pi$ 电子态的形状共振光电子动力学, 发现对称性为 Π 和 Σ 的 NO^+ 电子态动力学行为有明显区别.

电子波包在分子形状共振附近的电离延时, 即形状共振的寿命相关的测量工作陆续开展. 然而, 这些电离延时测量都是在分子轴方向上取角度平均值 [4,5]、对比平行跃迁和垂直跃迁情况 [27], 或探测定态的光电子角分布 [17,21]. 分子形状共振的角分辨延时测量, 特别是 RABBIT 实验方法中的双光子电离延时与单光子吸收电离的 Wigner 电离延时之间的相对关系, 仍然是一个有待探讨的问题.

本文结合阿秒极紫外光源和电子-离子符合探测系统, 对 NO 分子 $4\sigma \rightarrow \sigma^*$ 形状共振过程进行研究, 通过基于 RABBIT 实验采集的 Ar 原子、He 原子、 NO 分子的光电子谱进行相位提取, 得到出射光电子的有效延时时对入射光子能量的依赖关系, 进一步探究了双光子过程光电离延时与单光子延时、连续态传播跃迁延时之间的关系. 理论计算得到形状共振过程初、末态电子波函数轨道, 讨论了其分子形状共振双光子电离延时与单光子电离延时之间的联系与区别, 并且发现 f 分波对该形状共振起主导作用.

2 阿秒符合干涉仪

2.1 阿秒电子离子三维动量符合测量

如图 2 所示, 实验中使用 Ti:sapphire 激光器产生近红外飞秒脉冲 (near-infrared femtosecond pulse, NIR), 中心波长为 790 nm, 激光脉宽 28 fs, 脉冲功率为 1.6 mJ, 重复频率为 10 kHz. 飞秒脉冲通过分束镜后, 其中一束光通过内部充满惰性气体氙气的光纤波导装置 [28], 基于气体高次谐波原理 [29,30] 产生极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 阿秒脉冲串, 产生的高次谐波主要覆盖 15 级到 23 级, 对应的光子能量为 23.85—36.57 eV. 产生极紫外

脉冲串后采用厚度为 100 nm 的铝箔将 XUV 中的 NIR 部分滤掉, 并通过镀金环面镜进行聚焦 ($f = 50$ cm). 极紫外阿秒脉冲与近红外飞秒脉冲两路光构成马赫-曾德尔干涉仪, 泵浦探测光路的相对光程, 由时间精度在阿秒级压电陶瓷电机主动伺服反馈控制系统实时调节, 精确操控泵浦探测光之间的相对延时.

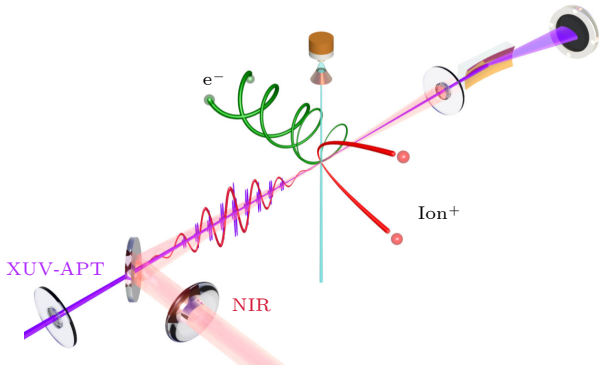


图 2 泵浦探测实验光路示意图, 泵浦光为高次谐波产生的极紫外阿秒脉冲串 (XUV-APT), 探测光为 NIR, 两路光分别聚焦后作用在 COLTRIMS 中的超声分子束上产生正离子碎片与电子

Fig. 2. Schematic diagram of the pump-probe experiment. The pump light is extreme ultraviolet attosecond pulse train (XUV-APT) generated by high-order harmonics generation process, and the probe light is NIR. Positive ion fragments and electrons are generated on an ultrasonic molecular beam in COLTRIMS. Two beams are focused respectively and reach on the ultrasonic jet in COLTRIMS to generate positive ion fragments and electrons.

此外, 实验系统还包括冷靶反冲动量谱仪 (cold target recoil ion momentum spectroscopy, COLTRIMS)^[31]. 该系统具有三维动量测量、 4π 空间立体角碎片收集、电子-离子多体符合测量的功能. XUV 与 NIR 分别聚焦共同作用在 COLTRIMS 中的超声分子束上, 产生的离子碎片与电子在谱仪内部的匀强电场和磁场作用下分别到达位于真空腔体两端的离子探测器和电子探测器, 带电粒子打在探测器上的位置可以通过 MCP 与延时线装置被精确确定, 再根据带电粒子在谱仪中的飞行时间, 就可以重构出探测到的每个粒子的三维动量, 获得反应体系内每个粒子的动量、能量信息.

2.2 RABBIT 原理

RABBIT 方法是探测阿秒尺度电子超快电离动力学的主要方法之一. 利用 XUV-APT 作为泵浦 (pump) 光, NIR 为探测 (probe) 光, 电子首先

吸收单个 XUV-APT 光子从初态跃迁至连续态, 同时吸收或放出一个 NIR 光子, 产生含有主级次峰 (main peak) 与边带 (sideband) 的光电子能谱, 其中边带电子来自具有相同能量的两种电离路径之间的干涉, 即吸收第 $q - 1$ 级 XUV-APT 光子后再吸收一个 NIR 光子电离的电子波包, 与吸收第 $q + 1$ 级 XUV-APT 光子后释放一个 NIR 光子电离产生的电子波包之间的干涉 (图 3). 边带信号随泵浦探测延时的改变发生周期性强度变化, 边带光电子谱强度的变化频率为 NIR 光载波频率的 2 倍. 而边带电子信号的振荡相位, 携带包含了阿秒脉冲啾啾、光电子出射时短程库仑相互作用产生的延时和电子传播过程中长程库仑与激光场耦合相互作用产生的延时等信息^[32-35].

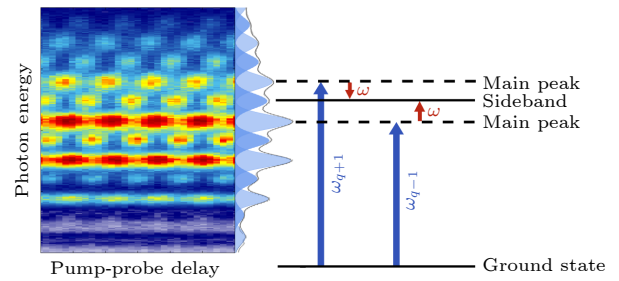


图 3 RABBIT 原理示意图. 左图为实验采集的氩原子阿秒光电子能谱, 右侧为抽运探测时间积分后的光电子能谱, 包含主级次电子和边带电子. 边带电子通过从第 $q - 1$ 级和第 $q + 1$ 级主级次电子分别吸收和释放一个 NIR 光子产生的两条量子跃迁路径干涉产生

Fig. 3. Schematic diagram of RABBIT method. The left figure shows the experimentally measured attosecond photoelectron spectrum of argon atoms. The pump-probe time delay integrated photoelectron kinetic energy distribution is shown in the right panel including the main peaks and sidebands. The q^{th} sideband electron is generated via the quantum interference between the pathways populated via the single NIR photon absorption and emission from the main peaks of the $(q - 1)^{\text{th}}$ and $(q + 1)^{\text{th}}$ order.

2.3 光电子辐射电离延时

由于量子力学中并没有表示时间的厄米算符, 要描述光电离过程中电子波包的时间延时, 首先需要引入由 Eisenbud, Wigner 和 Smith^[32,33] 建立和推导出的散射相移, 这种相移可以看作是散射电子波包与未受扰动电子波包之间的群速度延时, Eisenbud-Wigner-Smith (EWS) 延时 τ_{EWS} 可表示为粒子传播时被散射势赋予的相移的能量导数, 对角动量量子数为 l 的单个分波, 其延时可表示为

$$\tau_{\text{EWS}} = \hbar \frac{\partial \delta_1}{\partial E}, \quad (1)$$

其中 δ_1 为散射势, E 为电子波包的能量, \hbar 为约化普朗克常数. 而光电离可以描述为从势中心开始的半散射过程:

$$\tau = \hbar \frac{\partial \delta_1}{\partial E} = \hbar \partial [\arg \langle f | \mathbf{r} | i \rangle]. \quad (2)$$

采用 RABBIT 实验方法探测分子光电离过程, 当 XUV 场与 IR 场均为线偏振且偏振方向相同时, 采集的光电子边带强度存在关系:

$$\begin{aligned} P_{2q} &\propto \left| M^{(2q-1)} + M^{(2q+1)} \right|^2 \\ &= \left| M^{(2q-1)} \right|^2 + \left| M^{(2q+1)} \right|^2 + 2 \left| M^{(2q-1)} \right| \left| M^{(2q+1)} \right| \\ &\quad \times \cos \left[\arg \left\{ M^{(2q-1)} * M^{(2q+1)} \right\} \right], \end{aligned} \quad (3)$$

其中 $M^{(2q\pm 1)}$ 代表 $2q \pm 1$ 级边带电子的双光子跃迁矩阵元, 正 (负) 号表示吸收 (释放) 一个 NIR 光子. 边带相位延时对应的延时可以表示为

$$\tau_{\text{RB}}(2q) = \frac{1}{2\omega} \arg \left(M^{(2q-1)} * M^{(2q+1)} \right). \quad (4)$$

通常情况下, 分子双光子电离延时可以写成两项之和:

$$\tau_{\text{RB}}(2q) = \tau_{\text{cc}}(2q) + \tau_{\text{mol}}(2q), \quad (5)$$

其中 τ_{cc} 项不包含分子内部信息, 可以用连续态传播跃迁延时解释, 由近红外光场频率、靶离子库仑势场与光电子释放动能决定. $\tau_{\text{mol}}(2q)$ 项为与分子势能信息相关的时间延时, 但与单光子电离延时 $\tau_{1h\nu}$ 并不相等, 因此分子体系中测得的双光子跃迁时间延时不能像原子体系一样, 简单拆分成单光子跃迁延时 $\tau_{1h\nu}$ 与连续态传播跃迁延时 $\tau_{\text{cc}}(2q)$ 之和.

2.4 单中心展开量子散射计算

为了进一步从分波的角度, 理解分子形状共振的性质和由此产生的电离延时, 利用 NO 分子质心处散射分波进行了单中心展开的量子散射计算^[36,37]. 分子的电子结构采用 Hartree-Fock 近似处理, 初态和末态电子波函数通过分子质心处的单中心分波展开:

$$\Psi_i = \sum_{\ell m} R_{n\ell}(r) Y_{\ell m}(\hat{r}). \quad (6)$$

该展开由 $n = N/2$ 个占据轨道的反对称乘积构成, 使用 ePolyScat 实现^[36,37], 采用的最大角动量分波 $\ell_{\text{max}} = 60$. 在长度规范下, 线偏振光作用下的光电离偶极矩阵元可以表达为

$$\begin{aligned} I_{i,f} &= \left\langle \Psi_{f,k}^{(-)} \left| \mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{E}}_{\text{XUV}} \right| \Psi_i \right\rangle \\ &= \sqrt{\frac{4\pi}{3\kappa}} \sum_{\ell m \nu} I_{\ell m \nu} Y_{\ell m}(\hat{\kappa}) Y_{1\nu}^*(\hat{\mathbf{n}}), \end{aligned} \quad (7)$$

其中 $\Psi_{f,k}^{(-)}$ 为末态波函数, Ψ_i 为初态波函数, \mathbf{r} 为位置算符, $Y_{\ell m}$ 为球谐函数, $\hat{\kappa}$ 是出射光电子波包的渐进动量, $Y_{1,\nu=0,\pm 1}$ 函数表示 XUV 在分子坐标系中的取向 $\hat{\mathbf{E}}_{\text{XUV}}$.

由于在实验室坐标系下, 分子取向随机排列, 无法提取相对于分子轴的各个发射方向上的电子电离延时, 所以探测到延时分布是分子取向、发射方向平均的结果, 而分子坐标系下的光电子角分布则有更丰富的结构, 并且可以获取散射光电子分波分辨的振幅和相位值, 进而获得相对于分子轴方向的角度分辨的光电子电离延时. 在分子取向固定时, 分子坐标系内光电子延时随发射角的关系可表示为:

$$\begin{aligned} \tau_{\text{mol}}^{\text{MF}}(2q, \hat{k}) &= \frac{1}{2\omega} \arg \left[\sum_{\substack{LM \\ L'M'}} Y_{L'M'}^*(\hat{k}) Y_{LM}(\hat{k}) \right. \\ &\quad \times \int d\hat{R}_\gamma A(\hat{R}_\gamma) b_{L'M';(2q-1)}^*(\hat{R}_\gamma) \\ &\quad \left. \times b_{LM;(2q+1)}(\hat{R}_\gamma) \right]. \end{aligned} \quad (8)$$

其中 \hat{k} 表示光电子在分子坐标系中的发射角度, \hat{R}_γ 表示分子取向.

在实验室坐标系下测量到的无角度分辨的双光子电离延时, 是所有分子取向和光电子发射角平均后的结果, 可以表示为

$$\begin{aligned} \tau_{\text{mol}}^{\text{MF}}(2q) &= \frac{1}{2\omega} \arg \left[\sum_{\substack{LM \\ L'M'}} \int d\hat{R}_\gamma b_{L'M';(2q-1)}^*(\hat{R}_\gamma) \right. \\ &\quad \left. \times b_{LM;(2q+1)}(\hat{R}_\gamma) \right]. \end{aligned} \quad (9)$$

光电离截面是光电离动力学研究中的一个特征参数^[38], 光电离截面在某一能量区域内快速增大是共振在实验上的显著特征, 因此在形状共振中被广泛研究, 由 (8) 式得出散射截面与光电子能量 E 的关系可以表示为

$$\sigma = \frac{4\pi^2 E}{3c} \sum |I_{i,f}|^2. \quad (10)$$

对于分子体系, 当线偏振光与物质相互作用

时,单光子电离的光电子角分布的一般表示^[39]为

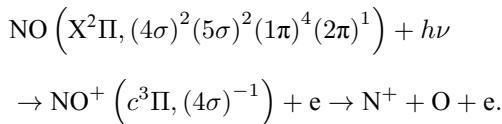
$$I(\theta) = \frac{\sigma_{\text{tot}}}{4\pi} [1 + \beta(3\cos^2\theta - 1)/2], \quad (11)$$

$$\beta = \frac{l_i(l_i - 1)\chi_{l_i, l_i - 1}^2 + (l_i + 1)(l_i + 2)\chi_{l_i, l_i - 1}^2 - 6l_i(l_i + 1)\chi_{l_i, l_i - 1}\chi_{l_i, l_i + 1} \cos(\delta_{l_i + 1}(\varepsilon) - \delta_{l_i - 1}(\varepsilon))}{(2l_i + 1)[l_i\chi_{l_i, l_i - 1}^2 + (l_i + 1)\chi_{l_i, l_i + 1}^2]}, \quad (12)$$

其中, l_i 是初态轨道角动量量子数, $\chi_{l_i, l_i \pm 1}$ 为偶极跃迁允许的自由电子分波的径向矩阵元, $l = l_i \pm 1$, $\delta_{l_i \pm 1}$ 是相互作用引起的相移. 由 (12) 式可得, 不对称参数 β 对能量的依赖关系主要由余弦项决定, 其变化主要取决于相移随能量的变化. 同时, β 也取决于跃迁矩阵元 $\chi_{l_i, l_i + 1}$, $\chi_{l_i, l_i - 1}$ 的相对比例.

3 结果与讨论

本文研究的 NO 分子 $4\sigma \rightarrow \sigma^*$ 形状共振过程, 发生在 4σ 内壳层电子受到光激发后产生 $c^3\Pi$ NO⁺ 态, 产生 NO⁺ 离子态的电离势为 $I_p = 21.73$ eV, 之后解离产生 N⁺ 和 O 离子碎片, 由于电子电离路径在相似电子动能处存在多个离子态, 通过电子离子符合测量可以精确筛选出 $c^3\Pi$ 离子态对应的离子动能范围^[26], 从而在实验上筛选出来自 4σ 轨道上的光电子. 从 4σ 轨道上电离的光电子对应的 N⁺ 离子动能约为 0.45 eV, 实验上选出动能 $0.4 \text{ eV} < E_{\text{ion}}^N < 0.5 \text{ eV}$ 的 N⁺ 离子信号, 对应的电离解离路径为



其中, θ 为光电子发射方向与线偏光偏振矢量之间的夹角, β 称为不对称参数^[40], 取值为 $-1 \sim 2$. 不对称参数 β 可由 Cooper-Zare 方程计算得:

使用 ePolyScat 进行基于迭代 Schwinger 变分原理的量子散射计算, 得到 $4\sigma \rightarrow \sigma^*$ 形状共振过程的基态电子波函数分布, 及共振态电子波函数分布, 分别如图 4(a), (b) 所示, 其中 N 原子核位于 $z \approx 0.60$ Å, O 原子核位于 $z \approx -0.55$ Å. 光电离振幅、延时等分布的不对称性与初态、末态电子波函数分布的不对称性紧密相关, 且不同分子的形状共振过程中, 不对称延时的来源并不相同, 例如 CF₄ 分子形状共振中的不对称延时的来源是末态^[19], 而 CO 分子的不对称延时则由初态决定^[27]. 如图 4 所示, 在 NO 分子中初态轨道具有更明显的不对称性, 这种不对称性与 N, O 原子核具有不同势分布相关, 而对于计算得到的共振能量 $E = 7.9$ eV、共振宽度 $\Gamma = 4.2$ eV 的共振态, 该共振态处于局域电势中, 比初态轨道有更高的不对称性.

图 5 呈现实验获得的线偏振光作用下 Ar 原子、He 原子与 NO 分子的阿秒光电子能谱, 其中极紫外阿秒脉冲串产生光子能量主要集中在 23.85—36.57 eV 的谐波, 使氩原子 3p 电子 (电离势 $I_p = 15.76$ eV)、氦原子 1s 电子 (电离势 $I_p = 24.58$ eV) 发生电离, 同时, NO 分子 4σ 电子 (电离势 $I_p = 21.73$ eV) 电离, 形成 15—23 级主级次峰及其间的边带.

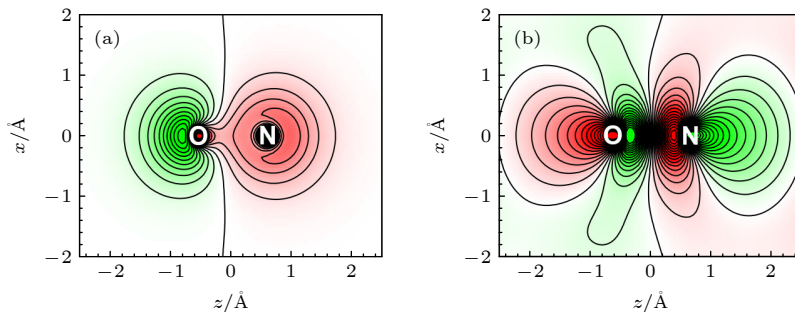


图 4 (a) NO 4σ 基态电子波函数, N 原子核位于 $z \approx 0.60$ Å, O 原子核位于 $z \approx -0.55$ Å, 波函数相位符号分别用绿色、红色标记; (b) NO σ^* 共振态电子波函数, 该共振态处于局域电势中

Fig. 4. (a) Electron wavefunction distribution of NO 4σ ground state. The N and O nuclei is located at $z \approx 0.60$ Å and $z \approx -0.55$ Å. The sign of electron wave function is marked in green and red; (b) electronic wave function distribution of the σ^* resonance state, which is trapped in a centrifugal potential in the classical presentation.

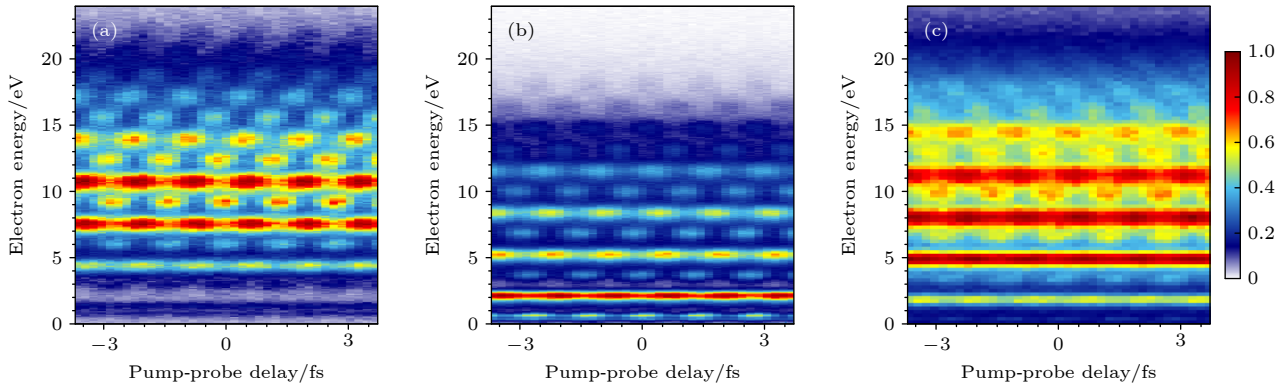


图 5 阿秒光电子能谱 (a) Ar 原子 3p 电离通道 ($I_p = 15.76$ eV); (b) He 原子 1s 电离通道 ($I_p = 24.58$ eV); (c) NO 分子 4 σ 电离解离通道 ($I_p = 21.73$ eV)

Fig. 5. Attosecond photoelectron spectra of the electron released from (a) Ar atom 3p state ($I_p = 24.58$ eV); (b) He atom 1s state ($I_p = 24.58$ eV); (c) NO molecular 4 σ orbital ($I_p = 21.73$ eV).

为了准确提取光电子谱中边带信号的相位及延时信息, 采用一系列高斯函数对主级次峰与边带延时积分后的强度分布进行拟合, 之后沿延时轴进行快速傅里叶变换, 通过复值拟合提取每一条边带的相位及振荡强度. 边带相位对应的电离延时包含阿秒脉冲啁啾、光电子出射时短程库仑相互作用产生的延时、和电子传播过程中长程库仑相互作用产生的延时等成分.

对 Ar, He 和 NO 通道的 RABBIT 谱进行全角度积分, 拟合得到有效延时 (effective delay), Ar, He 和 NO 不同边带对应的延时变化趋势一致, 吸收光子数越多, 边带级次越高时, 延时逐渐增大, 这与阿秒脉冲正啁啾理论上对延时的影响是一致的. 对 NO 与两种原子测得的相同边带的有效延时做差, 可以消除 NO 的延时中阿秒脉冲啁啾的影响, 将 NO 分子的相对延时定义为

$$\tau_{\text{exp}}^{\text{NO-He}} = \tau_{\text{SB}(\text{exp})}^{\text{NO}} - \tau_{\text{SB}(\text{exp})}^{\text{He}} + \tau_{\text{EWS}(\text{theo})}^{\text{He}} + \delta\tau_{\text{cc}(\text{theo})}^{\text{He-NO}}, \quad (13)$$

$$\tau_{\text{exp}}^{\text{NO-Ar}} = \tau_{\text{SB}(\text{exp})}^{\text{NO}} - \tau_{\text{SB}(\text{exp})}^{\text{Ar}} + \tau_{\text{EWS}(\text{theo})}^{\text{Ar}} + \delta\tau_{\text{cc}(\text{theo})}^{\text{Ar-NO}}. \quad (14)$$

结果如图 6 中蓝、绿色线所示, 图 6 中的橙色线代表相同能量下计算得到的单光子延时 $\tau_{1h\nu}^{\text{NO}}$, 又称 Wigner 延时, 以及计算得到的连续态传播跃迁延时 τ_{cc} . 如前面所述, RABBIT 实验提取的光电离延时对应于双光子跃迁过程, 在分子体系中并不等于单光子延时与连续态传播跃迁延时之和. 在图中可以看出, 对于 NO 分子 16-24 级边带信号, 实验上测得的单光子过程对应的相对延时 $\tau_{\text{exp}}^{\text{NO-He}}$, $\tau_{\text{exp}}^{\text{NO-Ar}}$ 与理论计算单光子延时 $\tau_{1h\nu}^{\text{NO}}$ 变化的趋势基本相同. NO 分子与不同原子的相对延时差, 来源于

Ar 和 He 原子本身在相同能量处有效延时的差值. 连续态传播跃迁延时 τ_{cc} 随能量的增大而增大, 而且受光场强度的影响, $\tau_{\text{NO-Ar}}$, $\tau_{\text{NO-He}}$ 与 $\tau_{1h\nu}$ 能量依赖关系的差异, 可能与 IR 光的光强以及形状共振电子与 τ_{cc} 之间的相互影响有关.

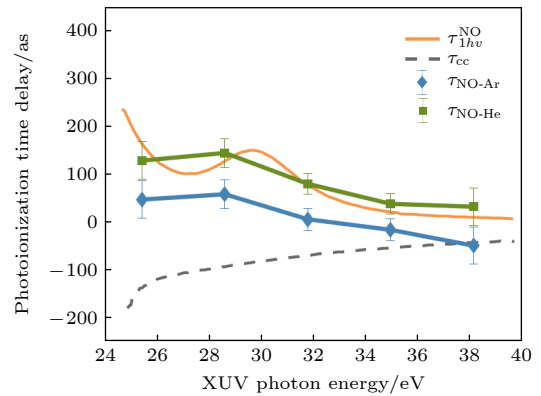


图 6 实验测量的 NO 分子有效相对光电子电离延时 $\tau_{\text{NO-Ar}}$, $\tau_{\text{NO-He}}$, 以及理论计算单光子延时 $\tau_{1h\nu}^{\text{NO}}$ 、连续态传播跃迁延时 τ_{cc}

Fig. 6. Experimentally measured effective photoemission time delay difference of $\tau_{\text{NO-Ar}}$, $\tau_{\text{NO-He}}$ and theoretically calculated one-photon delay $\tau_{1h\nu}^{\text{NO}}$ and continuum-continuum transition time delay τ_{cc} .

从时域波包演化角度看, 形状共振过程中, 由于离心势垒捕获囚禁连续态光电子, 相比于无束缚连续态电子, 形状共振电子的束缚囚禁过程表现为共振电离延时. 从分波的角度理解, 只有轨道角动量 $l > 2$ 的分波才能形成. 利用单中心量子散射, 对 $m = 0$, 具有不同角动量量子数 l 的分波进行理论计算, 得到图 7(a) 所示的离心势垒分布. 对于 l 较小的分波通道, 当 $l = 2$ 时才逐渐形成微小的

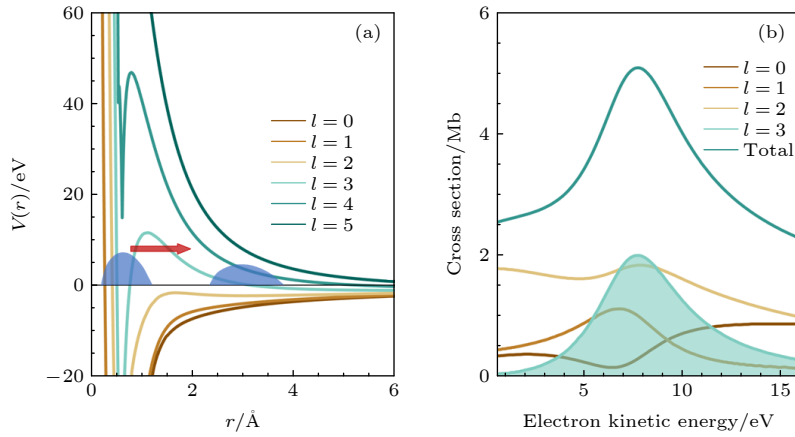


图 7 基于 ePolyScat 单中心量子散射模型的单分波通道理论计算结果 (a) $l = 0$ 到 $l = 5$ 的单分波离心势垒分布, 深蓝色包络为电子波包示意; (b) 不同分波通道的单光子电离散射截面随光电子动能的变化, 4σ 形状共振共振能量在光电子动能 8 eV 附近
Fig. 7. Partial wave resolved theoretical result based on ePolyScat calculation: (a) Centrifugal potential distribution of each partial wave channel from $l = 0$ to $l = 5$. The dark blue envelope represents the electron wave packet; (b) one-photon ionization scattering cross section for different partial wave channels. The 4σ shape resonance energy is centered at the photoelectron kinetic energy of 8 eV.

势垒, 但势阱很浅, 无法束缚光电子; 对于 l 更高的分波通道, 如 $l = 4, 5$, 势垒高度高于 45 eV 且势阱底部接近 20 eV, XUV 光子能量不足以将初始准束缚态布局到这些高角动量连续态; 只有 $l = 3$ 对应的 f 分波具备对形状共振有贡献的势垒形状。

此外, 光电离散射截面的增强效应是共振过程的显著特征, 对单个分波进行散射截面的计算, 可以直观反映不同分波通道对形状共振的贡献。利用单中心量子散射方法, 对 4σ 电子的 XUV 单光子电离过程进行理论计算, 计算得到 $m = 0$, 不同角动量量子数 l 分波电离通道的散射截面, 如图 7(b) 所示。对于所有分波通道, 散射截面 σ 在光电子动能为 8 eV 附近出现了显著增大, 符合形状共振在共振能量处的特征。对于单个分波的通道, $l = 3(f)$ 分波在形状共振能量处有显著的散射截面增强效应, 且与所有分波的散射截面随能量的变化趋势相似、增幅相当, 而其他分波通道在共振能量附近只出现了轻微的调制, 均没有出现明显散射截面的增强效应。因此, 可推断 f 分波通道对形状共振过程起最显著的作用。

4 结 论

本文在实验上利用了基于高次谐波阿秒脉冲串及反冲动量谱仪构建的阿秒符合干涉仪, 对 NO 分子的 4σ 形状共振过程进行了电子离子三维动量符合测量, 利用 RABBIT 方法获得 NO 分子的光电子谱进行拟合与相位提取, 得到形状共振过

程中有效光电离延时随光子能量的变化关系, 发现实验探测到的双光子电离延时与单光子电离延时的变化密切相关, 同时该形状共振过程中电离延时整体特征主要由单光子电离延时决定。本文测量了关于 NO 分子形状共振中光电离延时的能量依赖关系, 以及单光子电离延时与双光子电离延时对比, 对于探究分子阿秒时间尺度电子超快动力学行为以及连续态电子共振具有重要意义。

参考文献

- [1] Charron E, Giusti-Suzor A, Mies F H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 692
- [2] Stapelfeldt H, Seideman T 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 543
- [3] Lafosse A, Lebech M, Brenot J C, Guyon P M, Jagutzki O, Spielberger L, Vervloet M, Houver J C, Dowek D 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5987
- [4] Nandi S, Plésiat E, Zhong S, Palacios A, Busto D, Isinger M, Neoričić L, Arnold C L, Squibb R J, Feifel R, Decleva P, L'Huillier A, Martín F, Gisselbrecht M 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba7762
- [5] Huppert M, Jordan I, Baykusheva D, Von Conta A, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 093001
- [6] Gong X, Heck S, Jelovina D, Perry C, Zinchenko K, Lucchese R, Wörner H J 2022 *Nature* **609** 507
- [7] Jiang W, Armstrong G S J, Tong J, Xu Y, Zuo Z, Qiang J, Lu P, Clarke D D A, Benda J, Fleischer A, Ni H, Ueda K, van der Hart H W, Brown A C, Gong X, Wu J 2022 *Nat. Commun.* **13** 5072
- [8] Kling M F, Siedschlag C, Verhoef A J, Khan J I, Schultze M, Uphues T, Ni Y, Uiberacker M, Drescher M, Krausz F, Vrakking M J J 2006 *Science* **312** 246
- [9] Gong X, Song Q, Ji Q, Pan H, Ding J, Wu J, Zeng H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 243001
- [10] Fermi E, Amaldi E, D'Agostino O, Rasetti F, Segrè E 1934 *Proc. R. Soc. London. Ser. A, Contain. Pap. Math. Phys.*

Character 146 483

- [11] Bohr N 1936 *Nature* **137** 344
- [12] Henson A B, Gersten S, Shagam Y, Narevicius J, Narevicius E 2012 *Science* **338** 234
- [13] Schulz G J 1973 *Rev. Mod. Phys.* **45** 423
- [14] Palmer R E, Rous P J 1992 *Rev. Mod. Phys.* **64** 383
- [15] Martin F, Burrow P D, Cai Z, Cloutier P, Hunting D, Sanche L 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 6
- [16] Kennedy D J, Manson S T, 1972 *Phys. Rev. A* **5** 227
- [17] Rist J, Klysssek K, Novikovskiy N M, Kircher M, Vela-Pérez I, Trabert D, Grundmann, S, Tsitsonis D, Siebert J, Geyer A, Melzer N, Schwarz C, Anders N, Kaiser L, Fehre K, Hartung A, Eckart S, Schmidt L P H, Schöffler M S, Davis V T, Williams J B, Trinter F, Dörner R, Demekhin P V, Jahnke T 2021 *Nat. Commun.* **12** 6657
- [18] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [19] Heck S, Baykusheva D, Han M, Ji J B, Perry C, Gong X, Wörner H J 2021 *Sci. Adv.* **7** eabj8121
- [20] Ahmadi H, Plésiat E, Moiola M, Frassetto F, Poletto L, Declava P, Schröter C D, Pfeifer T, Moshhammer R, Palacios A, Martin F, Sansone G 2022 *Nat. Commun.* **13** 1242
- [21] Holzmeier F, Joseph J, Houver J C, Lebech M, Dowek D, Lucchese R R 2021 *Nat. Commun.* **12** 7343
- [22] Gong X, Jiang W, Tong J, Qiang J, Lu P, Ni H, Lucchese R, Ueda K, Wu J 2022 *Phys. Rev. X* **12** 011002
- [23] Wallace S, Dill D, Dehmer J L 1982 *J. Chem. Phys.* **76** 1217
- [24] Suzuki Y I, Tang Y, Suzuki, T. 2012 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **14** 7309
- [25] Baykusheva D, Kraus P M, Zhang S B, Rohringer N, Wörner H J 2014 *Faraday Discuss.* **171** 113
- [26] Veyrinas K, Saquet N, Marggi Poullain S, Lebech M, Houver J C, Lucchese R R, Dowek D 2019 *J. Chem. Phys.* **151** 174305
- [27] Vos J, Cattaneo L, Patchkovskii S, Zimmermann T, Cirelli C, Lucchini M, Kheifets A, Landsman A S, Keller U 2018 *Science* **360** 1326
- [28] Popmintchev T, Chen M C, Arpin P, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Nat. Photonics* **4** 822
- [29] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [30] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [31] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, Schmidt-Böcking H 2000 *Phys. Rep.* **330** 95
- [32] Wigner E P 1955 *Phys. Rev.* **98** 145
- [33] Smith F T 1960 *Phys. Rev.* **118** 349
- [34] Dahlström J M, Guénot D, Klünder K, Gisselbrecht M, Mauritsson J, L'Huillier A, Maquet A, Taïeb R. 2013 *Chem. Phys.* **414** 53
- [35] Gong X, Jordan I, Huppert M, Heck S, Baykusheva D, Jelovina D, Schildand A. Wörner H J 2022 *CHIMIA* **76** 520
- [36] Natalense A P, Lucchese R R 1999 *J. Chem. Phys.* **111** 5344
- [37] Gianturco F A, Lucchese R R, Sanna N 1994 *J. Chem. Phys.* **100** 6464
- [38] Combes J M, Duclos P, Klein M, Seiler R 1987 *Commun. Math. Phys.* **110** 215
- [39] Grumblin, E. R, Sanov, A. 2011 *J. Chem. Phys.* **135** 064302
- [40] Zare R N 1972 *Mol. Photochem.* **4** 1

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Precise measurement of attosecond dynamics of NO molecular shape resonance*

Xu Yi-Dan¹⁾ Jiang Wen-Yu¹⁾ Tong Ji-Hong¹⁾ Han Lu-Lu¹⁾
Zuo Zi-Tan¹⁾ Xu Li-Ming²⁾ Gong Xiao-Chun^{1)†} Wu Jian^{1)‡}

1) (*State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 201100, China*)

2) (*School of Chemistry and Molecular Engineering, East China Normal University, Shanghai 201100, China*)

(Received 4 September 2022; revised manuscript received 29 September 2022)

Abstract

Shape resonance is an important and ubiquitous phenomenon in the process of molecular scattering and photoionization. The study of the attosecond photoemission time delay in the vicinity of the shape resonance is of great significance for understanding its intrinsic origin on a nature time scale of electron motion. In this paper, an advanced attosecond coincidence interferometer consisting of a near-infrared femtosecond light source and an extreme ultraviolet attosecond pulse train is used to study the shape resonance process of the 4s electron of nitric oxide molecules via reconstructing attosecond harmonic beating by measuring the interference of two-photon transitions (RABBIT). The energy dependent effective ionization time delay in the vicinity of the resonance energy region is reported. By comparing the relationship between the two-photon transition delay and the one-photon transition delay, it is found that the Wigner delay of the single-photon process is the main reason for the two-photon transition delay changing with energy. The effect of continuum-continuum delay is further explored. Theoretical calculations of the initial state (bound state) and final state (resonance state) electron wave function orbits of the resonance show that the shape resonance assisted time delay is dominated by the electrons trapped in the centrifugal potential barrier.

Keywords: shape resonance, attosecond photoionization time delay, attosecond coincidence interferometer

PACS: 33.20.Xx, 32.80.-t, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.71.20221735

* Project supported by the National Key Technology Research and Development Program of the Ministry of Science and Technology of China (Grant Nos. 2018YFA0306303, 2019YFA0308300), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12122404, 11974114, 11804098, 11834004, 91950203, 11621404), and the Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant Nos. 19560745900, 19JC1412200).

† Corresponding author. E-mail: xcgong@lps.ecnu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: jwu@phy.ecnu.edu.cn



NO分子形状共振阿秒动力学精密测量

徐一丹 姜雯昱 童继红 韩露露 左子潭 许理明 宫晓春 吴健

Precise measurement of attosecond dynamics of NO molecular shape resonance

Xu Yi-Dan Jiang Wen-Yu Tong Ji-Hong Han Lu-Lu Zuo Zi-Tan Xu Li-Ming Gong Xiao-Chun Wu Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 233301 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221735

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221735>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于瞬态光栅频率分辨光学开关装置的阿秒延时相位控制

Attosecond relative delay measurement using transient-grating frequency-resolved optical grating

物理学报. 2018, 67(21): 214202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181570>

双色双光子阿秒干涉光谱的程函近似模型

An eikonal approximation model for two-color two-photon attosecond interferometric spectrum

物理学报. 2021, 70(11): 113202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201785>

快速傅里叶变换在阿秒束线光路稳定控制中的应用

Phase control and stabilization in attosecond beamline with fast Fourier transform

物理学报. 2019, 68(21): 214204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191164>

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

专题: 阿秒物理

极性分子 CO 高次谐波产生过程中的不对称性*

杨艳¹⁾ 张斌¹⁾ 任仲雪¹⁾ 白光如¹⁾ 刘璐²⁾ 赵增秀^{1)†}

1) (国防科技大学物理系, 长沙 410073)

2) (华北电力大学数理学院, 北京 100096)

(2022 年 8 月 30 日收到; 2022 年 10 月 1 日收到修改稿)

极性分子由于其本身的不对称性, 在强激光场的作用下展现出丰富且复杂的电子动力学现象. 本文利用三维含时 Hartree-Fock 方法研究了极性分子 CO 的高次谐波产生过程. 通过高次谐波谱和时频分析结果可知, 当激光偏振沿分子轴方向时, 来自 C 和 O 两侧的电子对高次谐波的产生具有不同的贡献. 对于平台区较低阶的谐波, 仅 C 侧电离的电子参与谐波的产生. 而对于较高阶的谐波, C 和 O 两侧的电子共同参与谐波的辐射. 并且, 随着激光偏振与分子轴的夹角 θ 逐渐增大, C 和 O 两侧电子对谐波强度贡献的差异越来越小. 在高次谐波谱中能量 28 eV 附近发现了明显的形状共振峰, 随后通过强场近似理论解析了其不对称性. 本文的工作有助于推动高次谐波谱在追踪电子超快动力学和研究极性分子结构方面的应用.

关键词: 高次谐波, 极性分子, 含时 Hartree-Fock, 形状共振

PACS: 42.65.Ky, 33.80.-b, 31.15.A-

DOI: 10.7498/aps.71.20221714

1 引言

20 世纪 80 年代, 人们在实验中观测到了最早的高次谐波谱^[1,2]. 随后, 高次谐波的产生 (HHG) 过程就成为强场物理领域的研究热点之一^[3-6]. 该过程由激光与物质相互作用时产生的极端非线性效应导致, 其物理机制可用半经典的“三步模型”^[7,8]直观地描述, 即电离过程、加速过程和复合过程. 谐波谱中最大的能量通常被称为截止能量, 可以简单地用截止公式 $1.32I_p + 3.17U_p$ ^[9] 进行估算, 其中 I_p 和 U_p 分别表示电离能和有质动力势. 虽然关于高次谐波的研究已经从原子分子^[7,10,11] 拓展到了固体^[12-15] 和液体^[16,17] 等体系, 但是原子分子强场下的超快电子动力学研究依然十分重要, 许多超快

物理现象还没有得到充分理解, 其对分子结构和分子势场的依赖仍有待深入研究. 其中相对于非极性分子, 极性分子因其在轴向上电子分布的不均匀性 (例如图 1(a)), 展现出了更加丰富的超快物理现象, 如空间两侧辐射不对称的极性分子阿秒脉冲产生^[18] 以及各向异性的极性分子轨道层析成像^[19]. 特别是极性分子形状共振 (shape resonance) 的不对称性对于光电离时间延迟有着重要的影响^[20]. 因此, 对于极性分子 HHG 的研究, 有着十分重要的物理意义.

本文研究了极性分子 CO 在线偏振激光场作用下 HHG 过程. 第 2 节简单介绍理论方法和计算细节; 第 3 节主要从 C 和 O 两侧高次谐波辐射的强度、频率范围以及形状共振三个角度, 分析了极性分子 HHG 过程中的不对称性. 最后, 总结全文的研究内容.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2019YFA0307703)、国家自然科学基金重大研究计划 (批准号: 91850201) 和国家自然科学基金 (批准号: 11904341) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

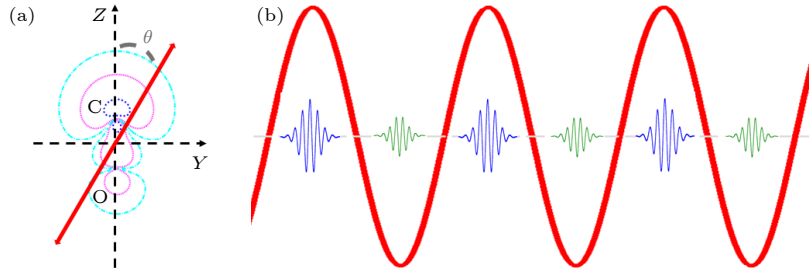


图 1 (a) 激光场与极性分子 CO 的几何关系示意图, 其中激光偏振 (红色双箭头) 与分子轴 (沿 Z 轴) 的夹角为 θ ; (b) 当激光偏振沿分子轴方向 (即 $\theta = 0^\circ$) 时, 在单色场 (红色粗实线) 的作用下, CO 分子每半个激光周期产生的阿秒脉冲 (蓝色和绿色细实线)
Fig. 1. (a) The geometric relation of the laser field and polar molecule CO, where θ is the angle between the molecular (Z) axis and the driving laser polarization (red double arrow); (b) attosecond bursts (blue and green thin solid lines) generated every half cycle of a monochromatic field (red thick line) from polar molecule CO when $\theta = 0^\circ$.

2 理论方法

本文使用三维含时 Hartree-Fock (3D-TDHF) 方法来研究 CO 分子的高次谐波谱. 依托 DMTDHF 程序包 [21] 对上述问题展开研究, 该程序包基于 Born-Oppenheimer 近似下的定核近似, 已经被成功应用于双原子的多电子动力学研究 [22–24]. 此外, 鉴于该程序包的开源性, 可以根据自己的个性化需求, 对其加以修改和完善, 进而开发出新功能. 选取 CO 分子的基态作为含时演化的初始态. 此时分子的总能量为 -112.7909 a.u. (1 a.u. = 27.2114 eV), 与文献 [25] 符合较好. 分子的核间距 R 取实验测量的平均值 2.14 a.u. (1 a.u. = 0.0529 nm), 令分子轴沿 Z 轴, 且 C 核和 O 核分别位于 Z 轴的 $\pm R/2$ 处 (如图 1(a) 所示). 所使用的激光场可表示为

$$E(t) = f(t)E_0 \sin(\omega_0 t), \quad (1)$$

其中激光的角频率 $\omega_0 = 0.05695$ a.u. (1.55 eV), 对应的波长为 800 nm; $E_0 = 0.0755$ a.u. 为电场的峰值强度, 对应的光强为 $I_0 = 2 \times 10^{14}$ W/cm². 此外, 脉冲包络 $f(t)$ 为 Ramped 包络, 其中上升区和下降区分别为 2 个光学周期 (T), 中间的平台区占 4 个光学周期.

根据高次谐波产生的三步模型 [7,8] 可知, 对于平台区的谐波, 除截止位置外, 其他谐波均有两条路径 (长路径和短路径) 的电子波包参与高次谐波的辐射. 虽然两条路径下电子波包间的相互干涉对高次谐波有着十分重要的影响, 但短路径的电子波包对实验上测量的谐波数据起主要贡献 [26,27]. 因此, 接下来主要关注短路径电子波包贡献的高次谐波谱. 目前有两种常见的方法可用来过滤掉长路径的电子波包, 即空间过滤法和时间过滤法. 对于复

杂的多电子分子, 在时域上区分长路径和短路径是非常困难的. 此外, 若所选择的计算空间越小, 则进行 3D-TDHF 方法所需的计算量越小. 基于以上因素, 本文选择空间过滤法筛选出 CO 分子短路径电子波包贡献的谐波谱.

在每一步的含时演化结束后, 分子波函数均乘以如下形式的吸收函数,

$$M(r) = \begin{cases} 1, & r \leq r_{\text{mask}}, \\ \cos^{\frac{1}{8}} \left(\frac{\pi(r - r_{\text{mask}})}{2(r_{\text{max}} - r_{\text{mask}})} \right), & r_{\text{mask}} < r \leq r_{\text{max}}. \end{cases} \quad (2)$$

通过电子轨迹的经典分析, 可以得到短路径电子能够到达的最远距离为 $L = 26.6$ a.u. 在 L 附近调节吸收参数 r_{mask} 和 r_{max} , 直至长路径电子波包的贡献被完全吸收. 最后, 通过对加速度形式下的含时偶极矩做傅里叶变换, 然后取其模的平方得到高次谐波谱 [10,28], 其中含时偶极矩为包含了所有电子与外场相互作用下的总偶极矩.

3 结果与讨论

3.1 不同取向角下的高次谐波谱

研究了 CO 分子在线偏振激光场下产生的高次谐波谱. 当激光偏振沿分子轴方向时, 即 $\theta = 0^\circ$, CO 分子产生的谐波谱及其对应的时频分析谱如图 2 所示. 仔细观察图 2(a), 发现整个谐波谱同时包含奇次和偶次谐波. 由于在沿 CO 分子轴方向上, 一个光学周期中相邻半周期产生的阿秒脉冲是不对称的 (如图 1(b) 所示), 这一对称性的破缺导致偶次谐波的产生. 谐波谱的截止位置在 H36 阶附近, 与截止公式估算的数值基本一致. 由于分子

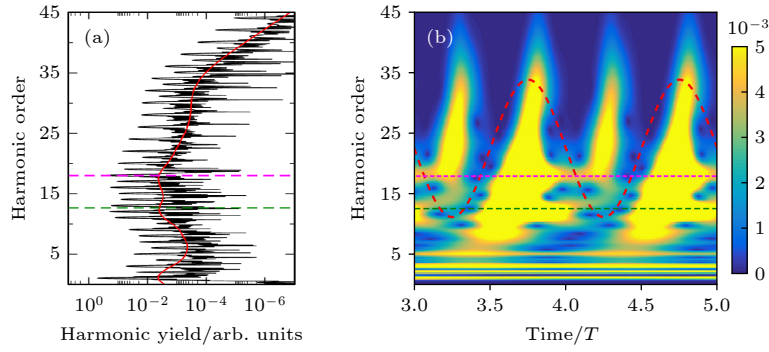


图 2 当激光偏振沿分子轴方向时, CO 分子产生的高次谐波谱 (a) 及其对应的时频分析 (b)

Fig. 2. High harmonic spectrum (a) and the corresponding time-frequency analysis (b) of CO molecules, when the laser polarization is along the molecular axis.

的电离能约等于最高占据轨道 (HOMO) 电子的束缚能, 故此处取 $I_p \approx E_{5\sigma} = 0.5549$ a.u. (15.10 eV). 图 2(a) 中的红色实线为谐波的均线, 结果显示在 H12.6 阶 (19.5 eV) 和 H18 阶 (27.9 eV) 谐波附近有两个明显的峰值. 其中 H12.6 阶谐波 (绿色虚线) 峰值能量正好等于 $I_p + E \cdot R$, 代表着从一个核附近电离出去的电子返回到距离较远的另一个核附近; H18 阶谐波附近的峰值 (玫红色虚线) 反映的是 CO 分子的形状共振^[29,30]. 形状共振是一种出现在分子中的常见现象——在光电离过程, 电离的电子在吸引势与排斥势组合作用下暂时被捕获而形成准束缚态的现象^[31]. 通常, 形状共振所对应的能级寿命在百阿秒量级.

显然, 通过整个谐波谱很难获得极性分子在激光相邻半周期产生的阿秒脉冲的辐射差异. 为了获取极性分子 HHG 过程中的时域信息, 利用 Morlet 小波变化^[32] 得到了 CO 分子的时频分析谱 (图 2(b)). 通过时频分析谱可以清晰地观察到长路径电子波包的吸收效果. 当吸收参数取值为 $r_{\text{mask}} = 17$ a.u. 和 $r_{\text{max}} = 40$ a.u. 时, 长路径电子波包对高次谐波的贡献基本被完全吸收. 可以看到相邻半周期的阿秒脉冲辐射也存在着明显的差异, 例如, (3.5T, 4.0T) 周期和 (4.0T, 4.5T) 周期. 通常情况下, 对于复杂的多电子体系, 多电子效应对体系的电子动力学将产生重要的影响^[11,19,23,33]. 显然, 由于相邻半个周期的阿秒脉冲均受到内壳层电子的影响, 因此, 通过多电子理论来分析相邻半周期的辐射差异十分困难. 为简化问题, 以隧穿电离时刻出射电子的方向来对电子进行区分. 当电场由 C 指向 O 时, 电离电子的出射方向为由 O 指向 C, 此时我们标记这个电子为 C 侧电离的电子. 通常, 从 C 侧电离

出去的电子也会从 C 侧返回到母离子附近, 与母离子复合并释放出高次谐波. 同理, 当电场反向的时候, 标记电子为从 O 侧出射的电子.

将上述对电离电子的分类方法同所用的激光场 (图 2(b) 中红色虚线所示) 相结合, 可以得到不同时刻辐射的阿秒脉冲是由哪侧电离的电子贡献而来. 换句话说, 我们可获得从不同方向返回的电子所辐射的阿秒脉冲在时域上的分布情况. 例如, (3.5T, 4.0T) 半周期内, 电场 $E(t)$ 为正值, 电场的方向由 O 指向 C, 此时由 C 侧电离出去的电子在电场的作用下被拉回母离子附近, 与母离子复合并释放出阿秒脉冲, 故此时间段内辐射的阿秒脉冲主要由 C 侧出射的电子贡献而来. 同理, (4.0T, 4.5T) 半周期内所辐射的阿秒脉冲主要来自于 O 侧电离电子的贡献. 显然 C 和 O 两侧辐射的阿秒脉冲存在明显的差异. 一方面, 在 (3.5T, 4.0T) 半周期内, 由 C 侧电子贡献的阿秒脉冲强度明显要高于 (4.0T, 4.5T) 半周期由 O 侧电子贡献的结果. 这是由于 C 和 O 两侧的电离率存在的巨大差异导致^[22]. 另一方面, 来自 C 侧的谐波辐射的频率范围也要明显宽于 O 侧的结果. 此处, 对于平台区的高次谐波, H7 阶到 H17 阶的谐波主要由 C 侧电离的电子贡献产生, 其余的谐波 (即从 H18 阶到 H36 阶) 则是由 C 和 O 两端的电子共同参与的结果. 两端电离的电子对不同阶谐波的贡献差异体现了多电子动力学的复杂性. 最后, 对于图 2(a) 谐波谱中出现的两个峰值, 在时频分析结果中也有明显的体现. 对于 H12.6 阶谐波所在的峰值, 此时可以明确是由 C 侧电离的电子复合到了较远的原子核 O 附近形成的; 而 H18 阶的谐波峰值则是由 C 和 O 两侧的能量相近的形状共振所导致.

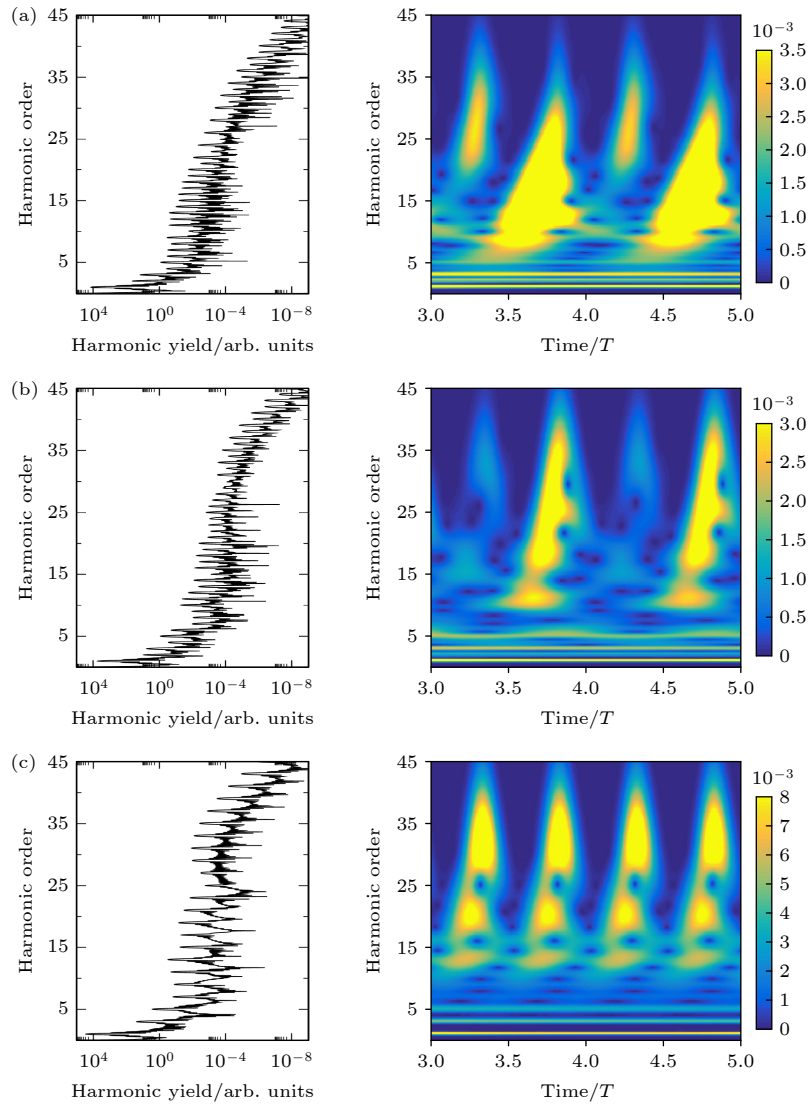


图3 不同取向角 θ 下, CO分子产生的高次谐波谱及其对应的时频分析 (a) $\theta = 30^\circ$; (b) $\theta = 60^\circ$; (c) $\theta = 90^\circ$. 除 θ 外, 其他计算参数同图2保持一致, 其中 θ 为分子轴与激光偏振的夹角, 如图1(a)所示

Fig. 3. High harmonic spectra and corresponding time-frequency analyses at (a) $\theta = 30^\circ$, (b) $\theta = 60^\circ$ and (c) $\theta = 90^\circ$. Note all parameters remain the same with Fig. 2; except for θ , where θ is the angle between the molecular axis and the driving laser polarization as shown in Fig. 1 (a).

为了进一步明确C和O两侧出射电子对谐波辐射强度的贡献差异, 我们研究了不同取向角 θ 下CO分子产生的高次谐波谱及其对应的时频分析谱, 如图3所示. 其中, 左栏为高次谐波谱, 右栏为对应的时频分析结果. 注: 除 θ 外, 其余的计算参数同图2一致. 当 $\theta \neq 0^\circ$ 时, 谐波辐射并不是线偏振的. 本文重点关注谐波辐射的主要分量, 即谐波沿激光偏振方向的分量. 已知电子的超快动力学受到分子取向的强烈调制, 故对于平台区的谐波而言, 来自两端的阿秒辐射同样受到 θ 的重要影响. 连同图2(b)一起观察, 可以发现当改变 θ 时, 来自两端的谐波强度和辐射贡献范围, 均发生了明显的变化.

当 $\theta = 0^\circ$ 时, 相邻半周期的差异达到最大; 随着取向角 θ 的增加, 差异越来越小; 直至 $\theta = 90^\circ$ 时, 两端差异完全消失. 通过时频分析结果可知, 相邻半周期的阿秒脉冲完全一样, 与谐波谱中仅包含奇次谐波相互验证, 如图3(c)所示. 这一结果反映出沿激光偏振方向的轨道波函数完全对称导致来自两端的辐射差异完全消失.

3.2 HHG 不对称性的数值分析

为了验证3.1节的结论, 下面通过谐波强度对极性分子的不对称性进行数值分析. 已知分子总的谐波谱是由C和O两侧辐射的阿秒脉冲相互干涉

而来的,为获取 C 和 O 两侧的辐射强度差异,应分别得到两侧的谐波辐射强度.首先,根据谐波的时频分析谱,可以获取任意一端谐波辐射的时间范围.然后,利用这个时间信息,调整合适的时间窗^[34],再同含时偶极矩相结合便可以滤出仅来自一端的谐波谱.用 I_C (或 I_O) 来标记仅来自 C 端(或 O 端)电离出去电子返回母离子后辐射的谐波强度,其中对谐波的积分范围为从 H7 阶到 H50 阶.最终,计算来自 C 和 O 两端的谐波强度比值 I_C/I_O ,结果如图 4 所示.整体来看, I_C/I_O 随着取向角的增加,越来越小,表示极性分子的极化特性随着取向角的增加越来越不明显.在 $\theta = 0^\circ$ 附近,分子的极性最大.当 $\theta = 90^\circ$ 时,该比值为 1,分子的极性消失.这与之前的预测一致.

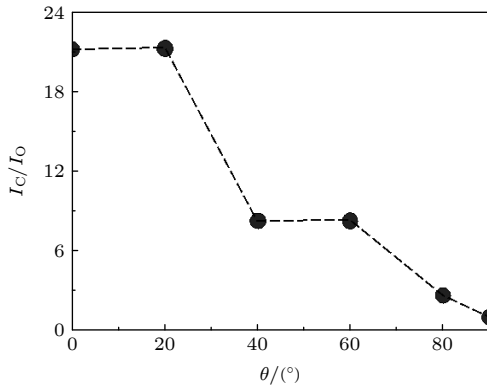


图 4 I_C/I_O 随着取向角 θ 的变化关系,其中 I_C (或 I_O) 代表从 C 侧(或 O 侧)电离电子所辐射的谐波强度.谐波强度的积分范围为 H7 阶到 H50 阶

Fig. 4. I_C/I_O as a function of the θ . I_C (or I_O) denotes the harmonic intensity emitted by the electrons ionized from C (or O) side with an integration range from H7th to H50th.

上面关于极性分子差异的理论分析,在实验上并不能实现.如何在实验上获取分子的极性信息呢?在沿激光偏振的方向上,如果轨道波函数是对称的,那么谐波谱中仅包含奇次谐波.当对称性被破坏时,偶次谐波就出现了,因此奇偶次谐波的相对强度在一定程度上可以反映出分子体系的对称性.因此,下面研究平台区偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的变化关系,如图 5 所示.结果显示,当 $\theta = 0^\circ$ 时, I_{2n}/I_{2n+1} 达到最大值;当 $\theta = 90^\circ$ 时, I_{2n}/I_{2n+1} 达到最小值.整体来看,平台区的偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的增加呈递减的趋势.图 4 和图 5 均表明,CO 分子的极性差异随着激光偏振与分子轴的夹角的变化存在一定的角分布结构.

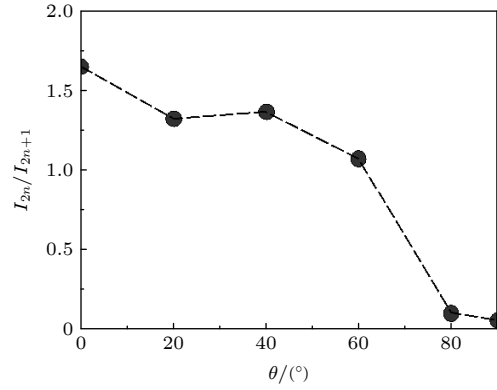


图 5 平台区的偶次和奇次谐波的强度比 I_{2n}/I_{2n+1} 随着取向角 θ 的变化关系,其中 I_{2n} (或 I_{2n+1}) 表示对 H7 到 H50 阶谐波中偶(或奇)次谐波的强度积分结果

Fig. 5. The intensity ratio of even and odd order harmonics I_{2n}/I_{2n+1} versus the alignment angle θ , where I_{2n} (or I_{2n+1}) represents the integrated intensity of even (or odd) order harmonics with a frequency range from H7th to H50th.

3.3 形状共振不对称性的分析

3.1 节对于图 2 的描述中提到,谐波谱第 H18 阶附近有个明显的峰值,表示形状共振的位置.从时频分析结果中明显看到沿 C 和 O 不同方向上的形状共振强度存在明显差异.下面通过强场近似(SFA)理论来分析形状共振的不对称性.

在 SFA^[9,35,36] 下,高次谐波的强度可以写为

$$S(\omega) \propto N\omega^4 |a[k(\omega)]d(\omega)|^2, \quad (3)$$

其中, N 为电离速率; $a[k(\omega)]$ 表示返回电子波包的振幅; $d(\omega) = \langle \Psi_0 | r | k(\omega) \rangle$ 表示基态 Ψ_0 到连续态 $k(\omega) = \sqrt{2\omega}$ 的跃迁矩阵元.光电离截面表示使原子分子中占据电子的壳层产生空穴的概率.光电离截面 $\sigma(\omega)$ 与跃迁矩阵元 $d(\omega)$ 满足如下关系式:

$$\sigma(\omega) \propto d^2(\omega). \quad (4)$$

对于,任意一侧(C或O)的谐波辐射均满足(3)式,故有

$$S_{CO}(\omega) \propto N_{CO}\omega^4 |a[k(\omega)]d_{CO}(\omega)|^2. \quad (5)$$

根据上述表达式,可以得到来自 C 侧辐射的谐波强度与来自 O 侧的比值:

$$\frac{S_C(\omega)}{S_O(\omega)} = \frac{N_C \sigma_C(\omega)}{N_O \sigma_O(\omega)}. \quad (6)$$

因此,如果已知 C 和 O 两侧的谐波强度比和电离比,就可以得到光电离截面的比值 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)}$.下面通过

3 种不同的处理方法来计算截面比值,并进行对比.方法一,我们在仅考虑 HOMO 轨道的前提下,使用

ePloyScat 程序 [37,38] 计算所得的 CO 分子的光电离截面, 结果如图 6 所示. 位于 27.5 eV 附近的形状共振所对应的光电离截面比值为 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 3.02$. 方法二, 利用前面提到的通过选取恰当的时间窗函数可挑选出 C 侧或 O 侧单独贡献的谐波谱. 当 $\theta = 0^\circ$ 时, 计算得到 H18 阶 C 和 O 两侧的谐波辐射强度比为 $\frac{S_C(\omega)}{S_O(\omega)} = 15.92$. 此外, 电离速率随着时间的变化关系如图 7 所示. 图 7 中黑色实线为归一化的电子占据数, 通过求解电子占据数对时间的导数可得分子的电离速率 (绿色实线). 蓝色箭头所示区域为激光的平台区所对应的电离速率区间. 在同一个光

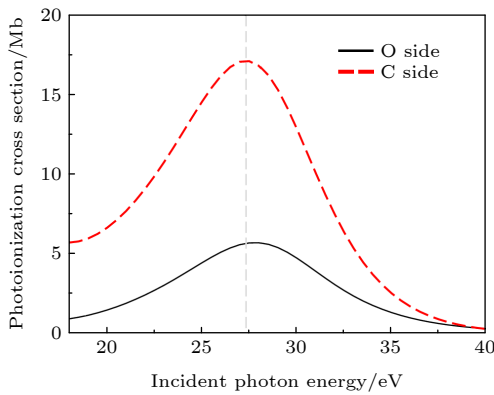


图 6 沿 O(黑色实线)和 C(红色虚线)两侧的最外层轨道的光电离截面, 该结果由 ePloyScat 程序计算所得

Fig. 6. Photoionization cross sections of the HOMO from O side (black solid line) and C side (red dotted line), which are simulated by ePloyScat.

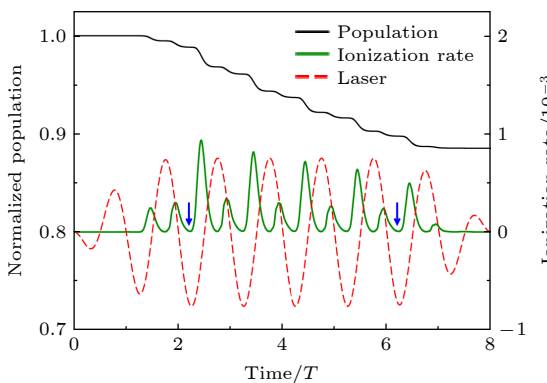


图 7 归一化的电子占据数 (黑色实线) 和电离速率 (绿色实线) 随着时间的变化关系. 红色虚线为激光场, 蓝色箭头所示的区域为激光脉冲的平台区

Fig. 7. Time profile of normalized population (black solid line) and ionization rates (green solid line) of electrons. The red dotted line denotes the used laser field. The time range marked by blue arrows is the plateau region of the used laser field.

学周期内, 电离速率的幅值较大的半周期对应为 C 侧电离的时间区间, 反之则为 O 侧电离的区间. 然后分别对处于平台区的 C 和 O 两侧的电离率求均值, 可得两侧电离率的比值为 $\frac{N_C}{N_O} = 2.71$. 利用 (6) 式, 最终可得 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 5.87$. 方法三, 由于直接在实验上分离出 C 或 O 侧的谐波贡献十分困难, 因此亟需另辟蹊径重新得到两侧的谐波强度比.

已知, C 和 O 两侧辐射的谐波强度同总的谐波强度之间满足如下关系:

$$\frac{|\sqrt{S_C} + \sqrt{S_O}|^2}{|\sqrt{S_C} - \sqrt{S_O}|^2} = \frac{2S(2n\omega_0)}{S[(2n-1)\omega_0] + S[(2n+1)\omega_0]} = \lambda^2, \quad (7)$$

其中对于总谐波谱的某阶谐波强度, 在实验上是可以获取的, 故 (7) 式中 λ 就会变成已知量. 对于 H18 阶处的形状共振位置的分析, 利用 $\frac{2S(\text{H18})}{S[\text{H17}] + S[\text{H19}]}$, 可得 $\lambda = 1.73$. 那么, 通过 $\frac{|\sqrt{S_C} + \sqrt{S_O}|^2}{|\sqrt{S_C} - \sqrt{S_O}|^2} = \lambda^2$, 可得 $\frac{S_C}{S_O} = \left(\frac{1+\lambda}{\lambda-1}\right)^2 = 14.59$. 再结合方法二中得到的两侧电离率的比值 $\frac{N_C}{N_O}$, 最终可得 $\frac{\sigma_C(\omega)}{\sigma_O(\omega)} = 5.38$.

上面通过两种方法 (方法二和方法三) 对 TDHF 结果进行了分析, 所得的截面比值十分接近, 但与基于单轨道假设的 ePloyScat 的计算结果存在较大差异. 这反映出内壳层电子的影响增大了极性分子谐波辐射的不对称性, 因此多电子效应对于极性分子的高次谐波辐射有着十分重要的影响.

4 总结与展望

本文使用三维含时 Hartree-Fock 方法研究了极性分子 CO 在强激光场的作用下产生高次谐波的过程. 当激光偏振沿分子轴方向时, CO 分子的谐波辐射在相邻半周期间存在明显的不对称性. 对于平台区的低阶谐波, 主要是 C 侧的贡献, 而对于高阶谐波, 则是由 C 和 O 两侧共同参与而来. 并且, C 侧与 O 侧的谐波辐射强度比值随着分子取向角 θ 的增加逐渐变小. 此外, C 和 O 两侧的形状共振也存在明显的差异, 通过强场近似理论得到 C 和 O 两侧的光电离截面比值在 5.5 附近, 大于只考虑 HOMO 轨道下应用 ePloyScat 程序计算所得

的比值 3. 由此可见多电子效应增强了极性分子的不对称性. 本文的研究工作探索了高次谐波在超快电子动力学方面的应用, 加深了对极性分子的高次谐波辐射过程中不对称性的理解, 为后续探究复杂体系的多电子动力学问题提供了有益的启示.

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [4] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [5] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [6] Mourou G 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 030501
- [7] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [8] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [9] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Lett. A* **49** 2117
- [10] Yang Y, Liu L, Zhao J, Tu Y, Liu J, Zhao Z 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 144009
- [11] Huang Y, Zhao J, Shu Z, Zhu Y, Liu J, Dong W, Wang X, Lü Z, Zhang D, Yuan J, Chen J, Zhao Z 2021 *Ultrafast Science* **2021** 9837107
- [12] Li L, Zhang Y, Lan P, Huang T, Zhu X, Zhai C, Yang K, He L, Zhang Q, Cao W, Lu P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 187401
- [13] Ghimire S, Reis D A 2019 *Nat. Phys.* **15** 10
- [14] Liu L, Zhao J, Dong W, Liu J, Huang Y, Zhao Z 2017 *Phys. Lett. A* **96** 053403
- [15] Liu L, Zhao J, Yuan J M, Zhao Z X 2019 *Chin. Phys. B* **28** 114205
- [16] Luu T T, Yin Z, Jain A, Gaumnitz T, Pertot Y, Ma J, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3723
- [17] Zeng A W, Bian X B 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 203901
- [18] Hu H, Li N, Liu P, Li R, Xu Z 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 173201
- [19] Ren Z, Yang Y, Zhu Y, Zan X, Zhao J, Zhao Z 2021 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **54** 185601
- [20] Vos J, Cattaneo L, Patchkovskii S, Zimmermann T, Cirelli C, Lucchini M, Kheifets A, Landsman A S, Keller U 2018 *Science* **360** 1326
- [21] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2015 *Comput. Phys. Commun.* **194** 84
- [22] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 163001
- [23] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2014 *Phys. Rev. A* **90** 035402
- [24] Zhang B, Zhao J, Zhao Z 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 043201
- [25] Kobus J 1993 *Chem. Phys. Lett.* **202** 7
- [26] Dong W, Hu H, Zhao Z 2020 *Opt. Express* **28** 22490
- [27] Zhang B, Lein M 2019 *Phys. Rev. A* **100** 043401
- [28] Le C T, Vu D D, Ngo C, Le V H 2019 *Phys. Rev. A* **100** 053418
- [29] Kraus P M, Baykusheva D, Wörner H J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 023001
- [30] Frunker E, Kajumba N, Bertrand J B, Wörner H J, Hebeisen C T, Hockett P, Spanner M, Patchkovskii S, Paulus G G, Villeneuve D M, Naumov A, Corkum P B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 233904
- [31] Xu K Z 2012 *Advanced Atomic and Molecular Physics* (3rd Ed.) (Hefei: University of Science and Technology of China Press) pp51—52 (in Chinese) [徐克尊 2012 高等原子分子物理学 第3版 (合肥: 中国科学技术大学出版社) 第51—52页]
- [32] Antoine P, Piraux B, Maquet A 1995 *Phys. Lett. A* **51** R1750
- [33] Shu Z, Liang H, Wang Y, Hu S, Chen S, Xu H, Ma R, Ding D, Chen J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 183202
- [34] Liu L, Zhao J, Yuan J M, Zhao Z X 2017 *Sci Sin-Phys. Mech. Astron.* **047** 033006 (in Chinese) [刘璐, 赵晶, 袁建民, 赵增秀 2017 中国科学: 物理学 力学 天文学 **047** 033006]
- [35] Chen Y J, Fu L B, Liu J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073902
- [36] Huang Y, Meng C, Wang X, Lü Z, Zhang D, Chen W, Zhao J, Yuan J, Zhao Z 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 123002
- [37] Gianturco F A, Lucchese R R, Sanna N 1994 *J. Chem. Phys.* **100** 6464
- [38] Natalense A P P, Lucchese R R 1999 *J. Chem. Phys.* **111** 5344

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Asymmetry in high-order harmonic generation of polar molecule CO*

Yang Yan¹⁾ Zhang Bin¹⁾ Ren Zhong-Xue¹⁾ Bai Guang-Ru¹⁾
Liu Lu²⁾ Zhao Zeng-Xiu^{1)†}

1) (*Department of Physics, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China*)

2) (*School of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Beijing 100096, China*)

(Received 30 August 2022; revised manuscript received 1 October 2022)

Abstract

Compared with nonpolar molecules, owing to the inherent asymmetry, polar molecules exhibit rich and very complex electronic dynamics under the interaction with strong laser fields. In this work, high-order harmonic generation (HHG) of polar molecules CO is investigated by using the three-dimensional time-dependent Hartree-Fock (3D-TDHF) theory, with all electrons active. Through the high harmonic spectra and time-frequency analyses, it is found that when the laser field polarizes along the molecular axis, the ionized electrons from the two sides (C side and O side) contribute differently to the harmonic radiation. On the one hand, the harmonic intensity from the C side is greater than that from the O side, which is caused by the ionization rate. On the other hand, for the lower-order (7th–17th order) harmonics of plateau region, only the electrons from the C side participate in the HHG. However, for its higher part (18th–36th order), the electrons from both C side and O side contribute to high harmonics simultaneously. Moreover, the difference between contributions from two sides is related to the alignment angle θ between the laser polarization and the molecular axis, and it reaches a maximum value around $\theta = 0^\circ$ and a minimum value around $\theta = 90^\circ$. There are two strong resonances around harmonic order H12.6 (19.5 eV) and H18 (27.9 eV) in the harmonic spectra when $\theta = 0^\circ$. The first resonance around H12.6 reveals that part of electrons ionized from the C side recombine to the vicinity of the further O nucleus. Near the second resonance around H18, there appears a shape resonance. Nevertheless, the shape resonances from the C and O sides are disparate. Based on the strong-field approximation theory, the ratio between photoionization cross sections from C and O sides around the shape resonance is calculated. The ratio is about 5.5 from 3D-TDHF, which is greater than the result of 3 simulated by ePloyScat, where only HOMO is considered. This discrepancy reveals that multi-electron effects enhance the asymmetry of polar molecules. This work provides an in-depth insight into the asymmetry in HHG of polar molecules, which benefits the generation of isolated attosecond pulse. It also promotes the application of high harmonic spectra in tracking the ultrafast dynamics of electrons.

Keywords: high-order harmonic generation, polar molecule, time-dependent Hartree-Fock, shape resonance

PACS: 42.65.Ky, 33.80.-b, 31.15.A-

DOI: 10.7498/aps.71.20221714

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2019YFA0307703), the Major Research Plan of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91850201), and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11904341).

† Corresponding author. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn



极性分子CO高次谐波产生过程中的不对称性

杨艳 张斌 任仲雪 白光如 刘璐 赵增秀

Asymmetry in high-order harmonic generation of polar molecule CO

Yang Yan Zhang Bin Ren Zhong-Xue Bai Guang-Ru Liu Lu Zhao Zeng-Xiu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 234204 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221714

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221714>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

准直的O₂分子高次谐波谱中的干涉效应

Interference effect in high order harmonic generation by aligned O₂

物理学报. 2021, 70(20): 204206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210433>

基于多组态含时Hartree-Fock方法研究电子关联对于H₂分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H₂ molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

原子错位堆栈增强双层MoS₂高次谐波产率

Enhancing high harmonic generation in bilayer MoS₂ by interlayer atomic dislocation

物理学报. 2021, 70(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210731>

相对论圆偏振激光与固体靶作用产生高次谐波

High order harmonics generation by relativistically circularly polarized laser-solid interaction

物理学报. 2018, 67(21): 214205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181574>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

专题: 阿秒物理

阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用*

陶琛玉¹⁾²⁾ 雷建廷¹⁾³⁾ 余璇¹⁾²⁾ 骆炎¹⁾⁴⁾ 马新文¹⁾²⁾ 张少锋^{1)2)†}

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

4) (河北大学物理科学与技术学院, 保定 071000)

(2022年12月26日收到; 2023年2月3日收到修改稿)

在过去 20 年里, 激光技术的发展使阿秒科学成为一个新的研究领域, 可为量子少体超快演化过程的研究提供新视角. 当前实验室中制备的阿秒脉冲以孤立脉冲或脉冲串的形式被广泛应用于实验研究中, 其超快变化的光场允许人们操控和跟踪电子在原子尺度的运动, 实现对亚飞秒时间尺度电子动力学的实时追踪. 本综述聚焦于阿秒科学的重要组成部分, 即原子分子超快动力学研究的进展. 首先介绍阿秒脉冲的产生和发展, 主要包括高次谐波原理和孤立阿秒脉冲分离方法; 然后系统地介绍阿秒脉冲在原子分子超快动力学研究中的应用, 包括光电离时间延迟、阿秒电荷迁移和非绝热分子动力学等方面; 最后对阿秒脉冲在原子分子超快动力学研究中的应用进行总结和展望.

关键词: 高次谐波, 阿秒科学, 泵浦-探测, 超快动力学**PACS:** 32.30.-r, 32.80.-t, 33.20.Xx, 42.65.Re**DOI:** 10.7498/aps.72.20222436

1 引言

自从 20 世纪 80 年代末发现高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 现象^[1,2] 以来, 气体、液体、固体乃至等离子体中的阿秒 (10^{-18} s) 现象便激发了人们的研究兴趣. 近 20 年中, 激光技术的进步使得阿秒脉冲光源从极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 波段延伸到光谱的软 X 射线区域, 极大地促进了阿秒时间分辨谱学和相应理论方法的发展^[3-5]. 当阿秒脉冲序列 (attosecond pulse train, APT) 或孤立阿秒脉冲 (single attosecond pulse, SAP) 同新兴测量手段相结合后, 便能实现在时间域上跟踪量子系统的动力学演化^[6-8]. 目前

在利用基本原子开展的相关研究中, 阿秒脉冲主要用于开展电子关联效应和不同原子轨道下光电发射特征时间延迟的研究. 其中基于阿秒时间分辨谱学的原子轨道光电离时间延迟^[9-11] 的测量是近年来的研究热点之一, 这种测量可以实现对量子力学基本原理中时间属性的直接检验. 在利用分子开展动力学研究中, 阿秒脉冲技术对分子的纯电子效应和非绝热动力学研究发挥着至关重要的作用. 其中, 以纯电子效应代表的电荷迁移 (charge migration, CM)^[12,13] 直接促进了人们对生化大分子光化学反应机理的理解^[14-16]; 而非绝热动力学研究则聚焦于波恩-奥本海默 (Born-Oppenheimer, BO) 近似的失效区域, 相关研究推动了电子运动和核运动的强耦合体系动力学理论的发展^[17,18].

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1602500) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhangshf@impcas.ac.cn

本综述的内容主要包括两大部分. 第一部分主要介绍阿秒脉冲的产生与发展, 第二部分将聚焦阿秒脉冲在原子分子动力学中的应用. 在第一部分中, 首先回顾 HHG 的研究历史并介绍其原理. HHG 是阿秒脉冲光源的产生基础, 也是从 APT 中分离 SAP 的基本依据. 另外介绍实验室制备 SAP 的方法. 第二部分将介绍阿秒脉冲在原子分子动力学中的应用, 包括基于 HHG 的动力学成像、光电离时间延迟、阿秒 CM 和非绝热分子动力学等内容.

2 阿秒脉冲的产生与发展

1960 年, Maiman^[19] 发明出世界上第一台激光器. 该激光器的增益介质为红宝石 (掺 Cr 的 Al_2O_3 晶体), 输出波长为 694.3 nm, 脉冲宽度约在微秒 (10^{-6} s) 量级. 随着调 Q、锁模等激光技术的快速发展^[20–22], 激光的脉冲宽度不断变窄, 很快便从纳秒 (10^{-9} s) 发展到飞秒 (10^{-15} s) 量级. 1999 年, Sutter 等^[23] 利用先进的锁模技术结合精心设计的频谱整形方法, 得到了脉宽小于 10 fs 的近红外 (near-infrared, NIR) 脉冲. 2011 年, Wirth 等^[24] 通过将红外 (infrared, IR)、可见光和紫外 (ultraviolet, UV) 波段的光场相干合成^[25], 得到了短至 2.4 fs 的超短脉冲. 2018 年, Silva 等^[26] 在光谱超连续展宽的基础上, 利用输入脉冲整形方法实现了三阶相位项的预补偿, 得到了脉冲宽度小于 3 fs 的周期量级脉冲. 值得一提的是, 2016 年 Hassan 等^[27] 发明出新一代光场合成装置, 将合成光谱扩展到深紫外区后, 相干合成脉冲的持续时间进一步缩短到数百个阿秒, 脉冲能量达到 50 μJ . 然而, 由于光谱展宽后高阶相位补偿的困难和相干合成中子脉冲时空控制的复杂性, 利用上述方法尚不能进一步产生数十乃至几阿秒脉宽的超短脉冲.

众所周知, 在更短的时间尺度上研究超快现象能够促进我们对物质中基本过程的理解^[3,5,28,29]. 例如, 对分子转动和振动过程的观测需要皮秒 (10^{-12} s) 和飞秒量级的时间分辨, 对原子分子核外电子运动的观测需要阿秒量级的时间分辨, 而对于原子核内核子运动观测更是要求时间分辨达到仄秒 (10^{-21} s) 量级^[6]. 超短脉冲作为目前人类所能控制的具有超高时间分辨探测手段, 在光化学反应动力学等基础研究方向显示出巨大的潜力.

2.1 HHG 的发现和基本原理

基于 HHG 的阿秒脉冲光源在近 20 年内快速发展, 并展现出了广阔的应用前景^[30,31]. 1987 年, McPherson 等^[1] 在 UV 辐射 (248 nm, 30 ps, 10^{15} – 10^{16} W/cm²) 与 Ne, Ar, Kr, Xe 等稀有气体相互作用的实验中, 首次观测到一系列频率为驱动光频率奇次倍的谐波辐射. 其中 Ar 气产生谐波的最高阶次为 13 阶, 对应的谐波波长为 19.1 nm. 1988 年, Ferray 等^[2] 报道利用 IR 光 (1036 nm, 10^{13} W/cm²) 与 Ar, Kr, Xe 等稀有气体相互作用产生奇次谐波的实验, 其中 Ar 气谐波的最高阶次为 33 阶次, 对应谐波波长为 32.2 nm. 随后, 在 IR 波段的皮秒和飞秒激光与稀有气体相互作用中也都观察到 HHG^[32–34]. 早期研究结果表明, HHG 是一种强场激光同气体相互作用产生的极端非线性光学过程.

典型的高次谐波谱如图 1 所示, 主要呈现出以下特点^[5]. 1) 高次谐波随着谐波阶数增加, 频谱范围迅速向 UV, XUV 乃至软 X 射线波段延伸. 谐波强度下降的速度远远慢于微扰理论预测的速度. 2) 光谱结构由一系列奇次谐波对应的分立尖峰组成, 相邻阶次的频率间隔为驱动光频率的 2 倍. 3) 整个高次谐波谱根据强度随谐波阶次的变化可分为三个部分: 一是微扰区谐波强度随谐波阶次的增加快速下降, 下降速度与微扰理论计算一致; 二是平台区谐波强度几乎不随谐波阶次增加而变化, 形成一个稳定的平台区域; 三是频率高于平台区末端 (截止频率) 的区域, 该区域的谐波随阶次增加迅速消失. 根据微扰非线性理论, 介质的非线性被当作一种弱扰动, 导致高阶的非线性效应依次变弱, 因此无法解释高次谐波频谱的平台特征^[35].

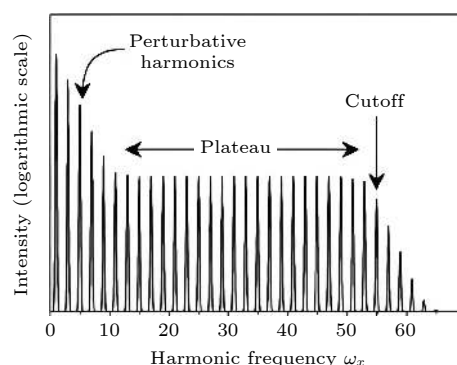


图 1 高次谐波频谱示意图^[5]

Fig. 1. Schematic representation of the HHG spectrum^[5].

实际上,当束缚电子处于强激光场中吸收比电离所需的最小光子数更多的光子时,会同时出现 HHG 和阈上电离 (above threshold ionization, ATI)^[36] 现象. 1989 年, Eberly 等^[37] 根据理论模型计算得出如下结论: 1) 高次谐波频谱的平台特征并不局限于稀有气体原子, 而是对于任何原子都能产生; 2) HHG 与 ATI 现象存在紧密关联, 都来源于单个原子与强激光场的相互作用. Schafer 等^[38] 于 1993 年详细比较了气体强场电离中的 HHG 与 ATI 光电子发射后, 提出相关过程包括两个步骤, 即束缚电子通过隧穿或多光子吸收发生电离和电子在强激光场中的运动演化, 并指出 HHG 只存在于电子在光场驱动下与原子核发生至少一次额外碰撞的情况当中. 同年, Corkum^[39] 在多光子电离的准静态模型中加入电子与离子的相互作用后, 提出了著名的“三步模型”理论, 其过程见图 2^[40].

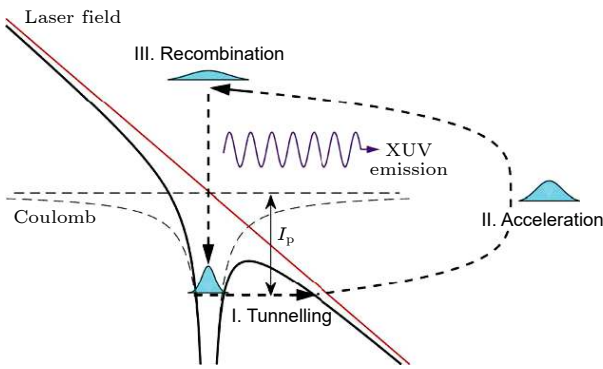


图 2 HHG 的半经典三步模型示意图^[40]

Fig. 2. Schematic of semi-classical three-step model for HHG^[40].

第一步, 原子内电子的束缚势垒在强激光场作用下被显著压低, 电子通过隧穿电离从原子束缚中释放. 由于隧穿电离的概率遵循量子隧穿原理, 光场极值附近的束缚势垒被压到最低, 电离最有可能发生, 并进一步假设在隧穿电离发生后, 电子以零速度进入连续态.

第二步, 忽略离子和光场磁分量对电子的影响, 仅由电场驱动连续态电子发生运动, 该过程可以利用牛顿运动方程描述电子运动轨迹的经典方法进行处理. 例如在线偏振光场作用下, 电子将沿激光偏振方向做一维振荡运动.

第三步, 在电场中运动的电子有一定概率会沿着返回母离子的轨迹运动, 并最终同母离子发生相互作用, 产生包括非弹性散射、弹性散射及复合三

种可能的反应机制. 其中, 非弹性散射是返回电子与母离子内其他电子发生碰撞, 通过将能量传递给母离子内的其他束缚电子, 有一定概率形成多电子电离. 弹性散射过程为返回电子同母离子作用后没有实际的能量交换, 在光场中多次加速后表现为 ATI 过程. 如果返回电子与母离子复合并回到基态, 其在光场中获得的动能以及从连续态到基态的跃迁能量之和将以高次谐波光子的形式释放出来, 对应 HHG 过程. 电子返回基态的概率由连续态波函数与基态波函数的重叠决定, 根据理论模型可得复合过程能释放光子的最高能量为

$$E_{\text{cutoff}}^{\text{max}} = \hbar\omega_{\text{cutoff}}^{\text{max}} = I_p + 3.17U_p, \quad (1)$$

其中, $E_{\text{cutoff}}^{\text{max}}$ 对应高次谐波截止能量, I_p 为电离势. $U_p = I/(8\omega_L^2)$ (原子单位制) 为有质动力势, 表示电子在周期性变化的光场中获得的平均动能, 其中 I 为激光强度, ω_L 为驱动光频率^[41,42].

半经典“三步模型”理论成功地解释了 HHG 的诸多特点. 1) 明确了 HHG 起源于单原子效应. 电子的隧穿电离和在强激光场中的经典运动具有普遍性, 因此该现象也不只存在于强激光场与稀有气体相互作用中. 2) 电子的电离时刻决定了其在光场中能获得的能量: 不同时刻电离电子与母离子发生复合会释放的能量不同, 因此高次谐波拥有宽广的频谱范围. 另外由于隧穿电离概率在光场达到峰值之后迅速减小, 由电子返回轨迹决定的发射光谱能自然形成谐波频谱中的平台结构. 3) 整个三步过程在驱动激光的每半个光周期就完整进行一次, 因此在时域上形成一串等时间间距的脉冲序列, 并由于干涉在频域形成梳齿状的分立高次谐波光谱 (图 1). 这些等距脉冲对应一系列阿秒量级的超短脉冲^[43].

“三步模型”的成功不但为控制和改良高次谐波光源提供了思路, 也对 SAP 的制备具有重要的指导价值. 模型中指出, HHG 的截止频率 $E_{\text{cutoff}}^{\text{max}}$ 由原子本身电离势 I_p 和有质动力势 U_p 决定. 这意味着为了得到高中心频率的激光脉冲, 应该采用高光强、长波长的飞秒激光与具有大电离势的原子相互作用的方案^[44]. 需要注意的是, 谐波产率会随着驱动激光波长增加而迅速下降^[45,46]. 另外, 模型中关于电子在强场中经典运动的描述强调了电子波包与母离子再碰撞过程的重要性: 电子在线偏光驱动下做一维振荡运动, 容易同母离子发生复合; 而利

用圆偏光、椭圆偏振光等非线偏光^[47–51]对电子运动驱动的不同特性可以实现对 HHG 过程的操控。

然而,半经典的“三步”模型只能给出高次谐波谱的宏观特征,并不能描述谱中精细的干涉结构.1994年,Lewenstein等^[52]提出解析的、全量子的强场近似理论(the strong-field approximation, SFA),现已广泛应用于研究强激光与原子分子、纳米结构的相互作用,以及量子模拟等新系统^[53].在该理论框架内,电子演化的量子轨迹被处理为具有累积相位的经典轨迹.这些电子轨迹可能具有相同的末态动能,但在演化过程中积累了不同的相位,轨迹叠加后会产生一系列干涉结构.图3是由含时薛定谔方程(time-dependent Schrödinger equation, TDSE)计算得到的采用峰值强度 1×10^{14} W/cm²、波长 1600 nm 的激光脉冲与 H 原子作用获得的典型高次谐波谱.可以看出,在光谱的截止(cutoff)区内存在两种主要的干涉结构:一种是来源于同一半光周期内的两条轨迹间干涉的大间隔干涉结构^[54,55],这种干涉结构既依赖于激光强度^[52,56],也受激光波长^[57]的控制;另一种干涉表现为高次谐波的频率间隔为 $2\omega_L$,且只存在于奇次谐波,这种干涉来源于不同半光周期内光电子的轨迹干涉.人们已经利用基频及 2 倍频光组成的平行或正交双色光场中实现了原子分子 HHG 过程的对称性破坏,在谐波谱中同时观测到奇次和偶次谐波^[58,59].

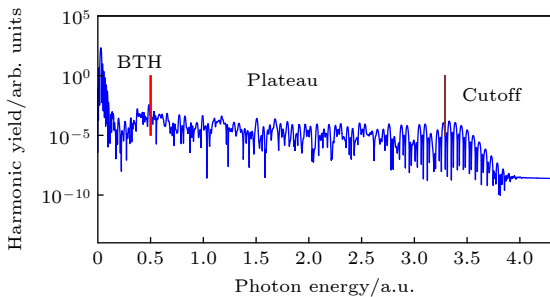


图3 波长 1600 nm, 峰值强度 1×10^{14} W/cm² 激光驱动下, H 原子的典型谐波谱^[8], 其中 BTH 表示阈下谐波
Fig. 3. Typical harmonic spectrum from H atom with a driving laser of wavelength 1600 nm at the peak intensity of 1×10^{14} W/cm²^[8]. The below threshold harmonics are abbreviated as BTH.

2.2 液体、固体和等离子体中的 HHG

由于“三步”模型和 SFA 理论都已明确指出 HHG 现象具有普遍性,人们开始尝试利用液体^[60,61]、固体^[62–67]、等离子体^[68]作为高次谐波的产生介质。

早期对于液体 HHG 的实验研究采用重复且频率可控的水滴射流进行^[69].2003年,Flettner等^[69]观测到从水滴介质中发射的 XUV 辐射,但这种辐射只是非相干的等离子体辐射. DiChiara 等^[60]于 2009 年利用中红外 3.66 μm 的激光照射厚度为 150 μm 水膜样品,在可见光波段观测到低阶谐波.2018 年,Luu 等^[61]使用平面微射流技术产生了厚度约 1.9 μm 可连续更新液板.这种新技术一方面消除了实验中球形液滴和圆柱形微射流固有的界面曲率变量;另一方面,液板连续更新的特性极大地降低了重吸收、相位失配、样品损伤以及 IR 驱动光微聚焦导致谐波发散的影响.最终,在水和一些醇类中观测到能量高于 20 eV 的谐波发射.液体介质 HHG 能同时克服固体 HHG 中样品低损伤阈值和气体 HHG 中低原子密度导致谐波产率低的缺点,被认为是提高 HHG 产额的优良介质。

固体 HHG 的实验最早采用反射式装置^[70–73],即强激光光束倾斜入射在固体靶上,产生的高谐波沿反射路径传播.然而,反射式方案的缺点在于光束入射角对光与物质相互作用影响的复杂性.针对反射式方案的缺陷发展出了传输型实验方案.该方案利用激光束垂直地击中固体目标,并沿传输路径产生高次谐波.2001 年,Chin 等^[74]首先开发了一种传输型装置,并利用该装置结合强中红外脉冲在 ZnSe 和 ZnTe 半导体中开展了 HHG 实验,并在约 200 fs, 10^{11} W/cm², 3.9 μm 激光脉冲驱动下,观察到高达 7 阶的谐波发射.2011 年,Ghimire 等^[62]报道了第一个固体中非微扰 HHG 实验.他们利用 3.25 μm 驱动光照射垂直光轴切割的 500 μm 厚的 ZnO 晶体,分别将在低脉冲能量 (0.52 μJ) 下谐波光谱延伸至 17 阶,将在高脉冲能量下 (2.63 μJ) 下谐波光谱延伸至 25 阶(图 4(a)).2016 年,Ndabashimiye 等^[75]在 Ar 和 Kr 的固相和液相中进行了 HHG 研究,发现与液相介质相比固相介质高次谐波谱中出现多个平台结构.固体 HHG 主要特点:1) 与气体 HHG 的截止能量与 E^2 (E 为电场强度) 成正比不同,谐波谱的高能截止与驱动激光电场强度成正比(图 4(b));2) 在固体中电子波包可以被激发到更高导带,这导致谐波光谱中表现出多个平台结构(图 4(c)).而在气体中,电子被直接电离到连续态,一般不会出现多平台.除上述特点外,固体 HHG 还具有晶向依赖^[62,76–78]和各种奇特的椭圆性依赖^[62,75,79,80],并受到介质长程有序性^[81,82]影响。

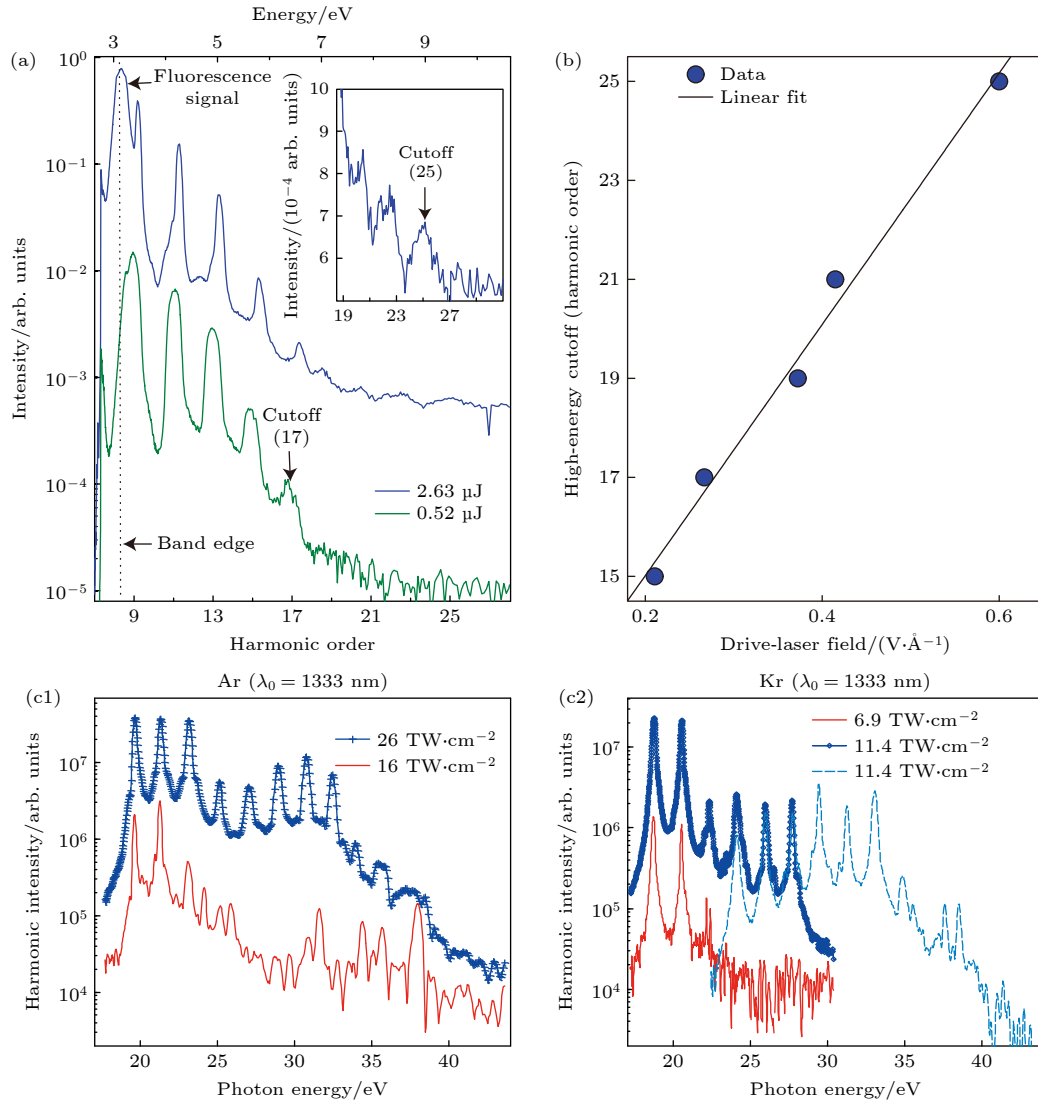


图 4 (a) ZnO 晶体 HHG 谱, 其中绿色和蓝色曲线分别表示驱动脉冲能量为 $0.52 \mu\text{J}$ 和 $2.63 \mu\text{J}$ 产生的谐波谱, 插图为 $2.63 \mu\text{J}$ 谐波谱的截止点及其附近的展开图^[62]; (b) 高能截止点与驱动激光电场的线性关系^[62]; (c1) 固相 Ar 的 HHG 谱, 展示了低强度 ($16 \text{ TW}/\text{cm}^2$) 下的单平台和较高强度 ($26 \text{ TW}/\text{cm}^2$) 下的双平台^[75]; (c2) 固相 Kr 的 HHG 谱, 谐波谱 ($11.4 \text{ TW}/\text{cm}^2$) 由不同谱仪分别获取的两个光谱连接而成^[75]

Fig. 4. (a) HHG spectrum of ZnO crystal, the green and blue curves represent the HHG spectrum generated by the driving pulse energies of $0.52 \mu\text{J}$ and $2.63 \mu\text{J}$, and the inset shows the expanded view at and near the cutoff of the $2.63 \mu\text{J}$ spectrum^[62]; (b) high-energy cutoff scales linearly with drive-laser electric field^[62]; (c1) HHG spectra from solid Ar, and single-platform at low intensity ($16 \text{ TW}/\text{cm}^2$) and dual-platform at higher intensity ($26 \text{ TW}/\text{cm}^2$) are shown^[75]; (c2) HHG spectra from solid Kr, and the spectrum ($11.4 \text{ TW}/\text{cm}^2$) is composed of two spectra taken by different spectrometers^[75].

因此, 固体材料的多样性和固体 HHG 的多自由度依赖为 HHG 特性的精密调控提供了条件。

早期利用等离子体产生高次谐波的工作起始于观察到短激光脉冲通过靶材表面等离子体后产生的谐波辐射^[83–85]. 与气体 HHG 不同, 在这些研究中并没有发现类似的平台结构. Ganeev 等^[68] 于 2005 年首先利用皮秒激光聚焦在 5 mm 厚硼板的表面激发硼等离子体, 而后利用另一束 10 mJ , 150 fs , $2 \times 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 的脉冲驱动硼等离子体产

生谐波辐射. 首次在激光烧蚀低激发等离子体 (中性原子和单电离离子组成) 中观察到谐波谱中的平台结构. 他们发现低阶谐波强度快速下降, 并在 19 阶谐波之后产生一个稳定的平台一直延伸至第 63 阶 ($\lambda = 12.6 \text{ nm}$) 谐波. 同年, 他们又报道了不同的固体靶材 (Ag, B, In, C, W, Se, Mo, Nb, Si, Zr, Mg, Cd, Pd, Al, Cr 和 Ta) 的低激发等离子体 HHG^[86], 发现除了 C, Se 和 W 中未出现平台结构外, 其他等离子谐波截止能量都和原子的第二电

离势呈现线性相关. 随后, 他们利用 Ag 和 Mn^[87,88] 为介质对上述关系进行了确认, 证明了由一价离子电离出的连续态电子在驱动光场中的运动是 HHG 的起源. 相关工作还发现等离子体 HHG 与气体 HHG 有诸多类似之处, 例如在气体中利用基频和其倍频场的双色驱动泵浦是一种常用的谐波增强方法, 这一方法也能应用在等离子体 HHG 中^[89,90]. 另外, 在少周期飞秒脉冲驱动等离子体产生 HHG 过程中还发现存在单一谐波共振增强^[88,91] 现象, 导致特定阶次谐波强度大大提高, 利用该特点有望在共振增强的连续波谱区域合成 SAP^[92]. 除此之外, 由于等离子体通常是由激光烧蚀固体表面产生, 可以通过表面形貌选择、表面沉积纳米颗粒、控制烧蚀激光脉冲的时空特性、烧蚀脉冲与驱动脉冲之间的时间延迟等参数来实现等离子体 HHG 的控制^[93].

2.3 基于高次谐波产生的阿秒脉冲光源

在满足相位匹配^[31] 条件后, 高次谐波强度显著增强, 迅速发展为一种桌面化的 XUV 相干光源^[94]. 其在原子分子光电离动力学研究中的应用已促成了许多成果产生, 例如通过对 N₂O⁺ 在 38.5 eV 光子能量下的库仑爆炸过程的研究发现了特殊的解离通道^[95], 在 34—43 eV 光子能量下, Ar, Ne 和 Xe 等原子光电子角分布测量为相对论效应的研究提供了新思路^[96,97] 等, 成为自由电子激光器和同步辐射在光电离动力学研究方面的重要补充. 与飞秒脉冲相似, 在宽 UV 频率区域进行锁相可以合成阿秒脉冲. 由此可见, 产生阿秒脉冲的必要条件是制备出宽谱高频的相干光源, 而气体 HHG 宽阔的平台和截止区域恰好满足要求.

目前基于 HHG 在产生 APT 或 SAP 的研究已经取得了非常大的进展^[35,98]. 早在 1990 年, Hänsch^[99] 指出一系列等间距的光频率相干叠加可以产生亚飞秒脉冲. 根据“三步”模型每半个驱动激光周期能够释放出一个阿秒脉冲, 整个 HHG 过程表现为间隔为驱动光周期一半的等间隔的 APT, 特别是单原子的截止区谐波具有锁定相位^[43,100]. 理论上这些锁相的谐波相干合成能够形成持续时间短至 $T_0/(2N)$ 的脉冲^[100,101], 其中 T_0 为驱动激光周期, N 为锁相谐波的数量.

由于 SAP 在阿秒时间分辨测量实验中的巨大价值^[28,102], 因此不同脉冲分离方案^[5,28] 先后被提

出并实现. 2001 年, Drescher 等^[103] 首次报道了孤立亚飞秒脉冲的产生. 在之后的 20 年间, 由于激光技术的进步使 SAP 的脉冲能量、脉冲宽度、稳定性、光谱覆盖范围等性能得到显著提升.

在 SAP 制备过程中具有载波包络相位 (carrier-envelope phase, CEP) 锁定的少周期驱动脉冲^[104,105] 至关重要. CEP 是激光脉冲包络峰值与内部电场峰值间的相位差, 极易受到外部环境因素的影响导致其发生漂移变动^[106–108]. 在少周期脉冲中, 电场的绝对时间变化显著地受到 CEP 的影响, 产生与长周期脉冲不同的现象^[109–114]. 在 CEP 锁定情况下, 当在驱动脉冲的持续时间内仅存在半个周期, HHG 的三步过程自然地仅能发生一次, 就只能发射一个阿秒脉冲. 因此使用少周期激光脉冲产生高次谐波是分离 SAP 最直接的方法. 然而, 直接在 IR 波段制作这样的半周期脉冲激光器仍是一个挑战.

2.3.1 振幅选通

振幅选通 (amplitude gating) 是利用 CEP 控制持续时间接近一个光周期的脉冲在脉冲包络峰值附近产生高能光子, 利用高次谐波截止区合成 SAP^[115]. 图 5 展示了线偏振少周期脉冲驱动的 HHG, 其中 φ 为驱动脉冲 CEP, T_0 为驱动脉冲的周期^[116]. 通过 CEP 控制使电场振荡峰值与脉冲峰值重合 (图 5(a) 中蓝线), 如果电场强度在脉冲中心处足以达到电离阈值, 则会释放出一个孤立的电子波包^[116]. 该电子波包进而在光场驱动下同母离子发生复合释放出 SAP (图 5(c)). 由于脉冲包络快速衰减, 少周期脉冲仅在脉冲峰值附近能释放出电子波包 (图 5(a) 中灰色箭头), 因此复合时电子具有最大能量, 进而产生“截止”区的 X 射线光子 (图 5(b))^[116]. 该区域的频谱分布由单个驱动脉冲周期内一次 X 射线发射 (图 5(b) 蓝线为连续谱, 对应 SAP^[111,117,118]) 或多次 X 射线发射 (图 5(b) 红线为分立谱, 对应 APT^[118]) 决定, 它对少周期脉冲的 CEP 的依赖非常敏感. CEP 稳定的少周期驱动脉冲产生的截止区^[114,115,119–122] 对应一个连续谱, 可用来直接合成 SAP. 2001 年由 Hentschel 等^[102,103] 通过 CEP 控制的 7 fs (约 3 个光周期) 驱动脉冲产生了历史上第一个阿秒脉冲, 宽度为 650 as. 2008 年, 当驱动激光脉冲持续时间缩短到 3.8 fs (小于 1.5 个光周期) 时产生了更广泛的连续谱, 振幅

选通后获得 80 as 的 SAP^[114]. 2013 年, Zhan 等^[121] 利用 CEP 稳定、脉宽小于 5 fs 脉冲驱动 Ne 气产生高次谐波, 结合振幅选通技术得到 160 as 的脉冲. 2017 年, Gaumnitz 等^[122] 利用脉宽约为 11 fs (小于 2 个光周期) 的驱动脉冲结合振幅选通获得了 43 as 的孤立脉冲, 覆盖约 100 eV 的带宽.

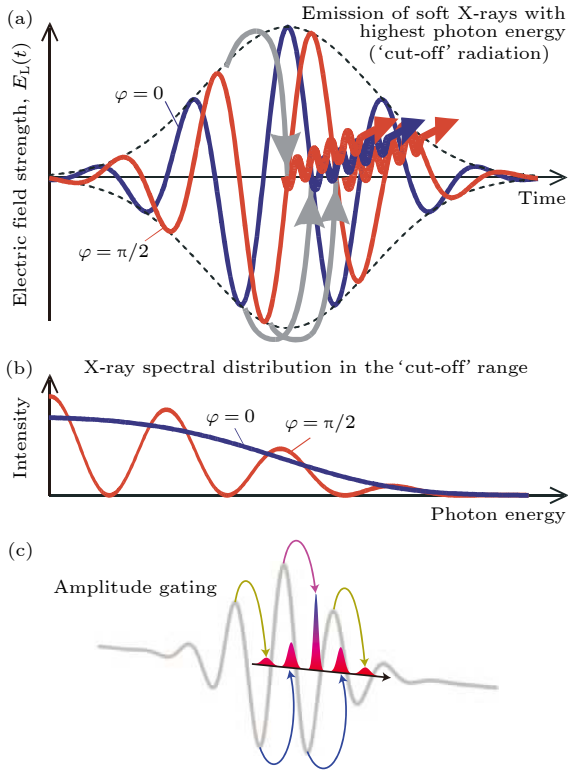


图 5 线偏振少周期激光产生的相干 XUV 和软 X 射线辐射 (a) 最高能量光子在脉冲峰值附近出射, 蓝线 ($\varphi = 0$) 和红线 ($\varphi = \pi/2$) 分别为不同 CEP 下的脉冲发射^[116]; (b) 不同 CEP 下 X 射线光谱截止区的连续性 (蓝线, $\varphi = 0$) 和准周期性 (红线, $\varphi = \pi/2$) 特征^[116]; (c) 振幅选通示意图^[8]

Fig. 5. Coherent XUV and soft-X-ray radiation generated by a linearly polarized, few-cycle light pulse: (a) Highest-energy photons are emitted near the pulse peak, the blue line ($\varphi = 0$) and the red line ($\varphi = \pi/2$) are the pulse emission under different CEPs, respectively^[116]; (b) the continuous (blue line, $\varphi = 0$) and quasi-periodic (red line, $\varphi = \pi/2$) features of the X-ray spectral distribution in the 'cut-off' range under different CEPs^[116]; (c) schematic of amplitude gating^[8].

2.3.2 电离选通

电离选通 (ionization gating) 是另一种与振幅选通相似的 SAP 分离方法. 它也是通过滤波提取谐波光谱截止区连续谱的方式, 从而实现 SAP 合成. 电离选通的理论和应用研究离不开半周期截止 (half-cycle cutoffs, HCOs) 测量方法的发展. 在

脉冲驱动 HHG 过程中, 电场峰值在不同半周期间急剧变化, 因此每半个周期产生一个频谱, 这些依赖半周期电场振幅极值的频谱截止值称为 HCOs (图 6(a)). HCOs 能量近似值: $E_{\text{HCO}} = I_p + 3.17 \times (E_{\text{HCM}}/2\omega)^2$, 其中 E_{HCM} 为半周期电场振幅极值. 理论上可以先从高次谐波谱中探测多个半周期信号的发射, 而后还原出谐波发射相对于驱动脉冲包络的时间信息^[123]. 2007 年, Haworth 等^[124] 首次观察了高次谐波谱中的 HCOs, 根据观察结果还原了飞秒驱动脉冲的 CEP, 精度达到 20 as, 并指出从 HCO 点开始的单个连续谱代表一个 300 as 的孤立脉冲. 而后, 多周期飞秒驱动 HHG 的 HCOs 观测实验^[125,126] 表明, 谐波发射被限制在激光脉冲前沿的一个或几个周期内, 实现了电离选通分离 SAP 的方案^[127].

电离选通是通过强驱动脉冲前沿的数个半周期内的气体介质剧烈电离产生高次谐波: 此时气体内的电离程度严重影响 IR 基波和谐波光束的相位匹配^[126](图 6(b)), 导致后续光周期内的 HHG 受到强烈抑制. 因此电离选通的唯一要求是驱动脉冲具有足够陡峭的前沿. 与振幅选通相比, 该方法放宽了对驱动激光超短的脉冲宽度限制, 不再局限于脉冲宽度小于两个周期的飞秒脉冲. 同时, 强驱动光场也使生成阿秒脉冲的通量显著提高^[128], 有望解决阿秒光源在 pump-probe 方面的应用限制. 另外, 通过改变驱动激光锁定的 CEP^[125,126,129], 能实现电离选通下谐波连续谱中心频率的移动, 即产生一种可调谐的 SAP 光源. 但是, 该方法选取的截止区连续谱范围较窄, 限制了产生 SAP 的最小脉宽.

2.3.3 偏振选通和双光选通

偏振选通 (polarization gating) 和双光选通 (double optical gating, DOG) 是两种相似的利用驱动光场的偏振特性实现 SAP 分离的方法. 由于 HHG 源于隧穿电离电子发生再散射后与母离子复合过程, 所以原子在线偏振驱动光场中一维往复运动能有效产生高次谐波. 而当驱动激光为椭圆偏振或圆偏振时, 高次谐波转换效率迅速下降^[130-132]. Sola 等^[133] 研究表明当椭圆率从 0 变化到 0.2 后, 高次谐波效率下降近 1 个量级. 如果驱动脉冲只在单个半周期内为线偏振, 在脉冲其余部分呈现椭圆偏振, 则高次谐波谱的平台区与截止区将合并为超连续谱.

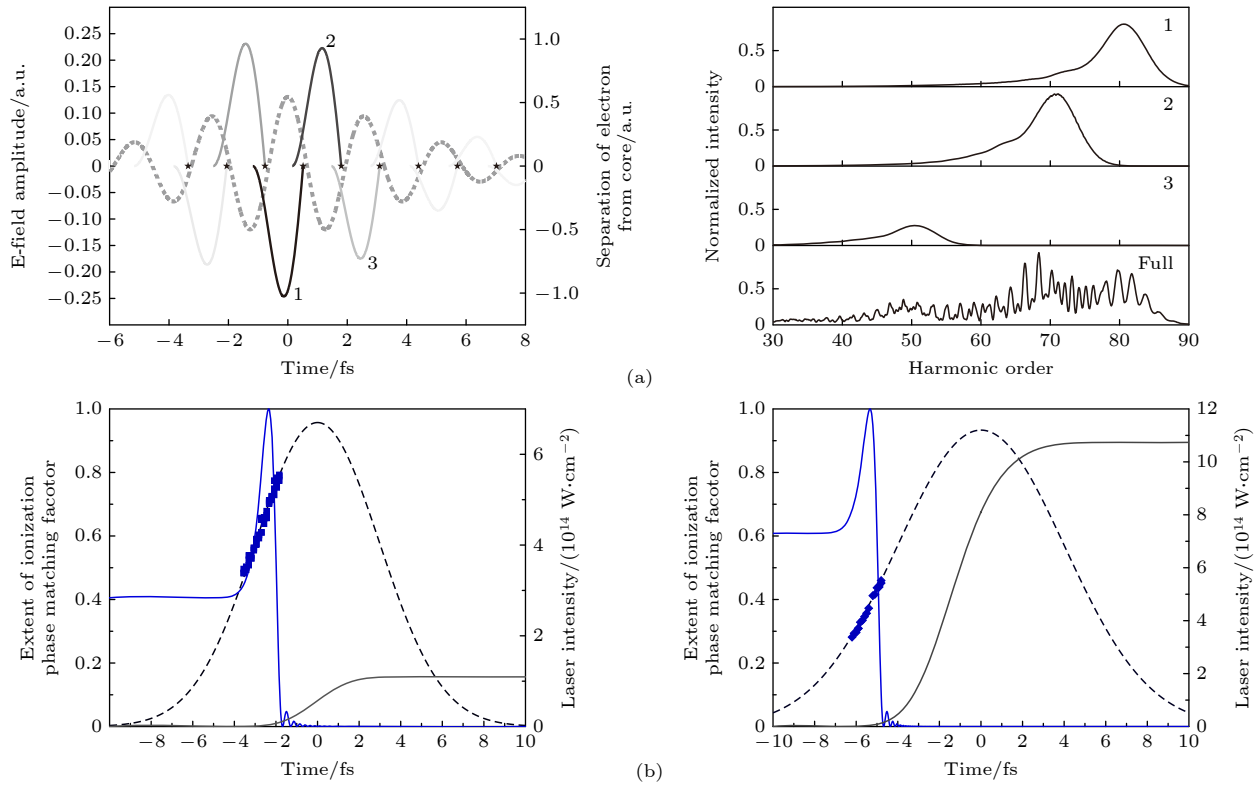


图 6 HCOs^[124] 和电离选通的原理示意图^[126] (a) 左侧: 由 SFA 计算得到的两周期激光脉冲电场 (虚线) 与对应的 HCO 电子轨迹. 灰度表示发射轨迹的相对强度. 右侧: 利用量子轨道模型分离出单个轨迹对应的谐波谱和截止位置. (b) 在不同激光脉冲强度 (虚线) 下计算得到的相位匹配因子 (蓝线). 灰线表示介质的对应电离程度. 蓝色方格为从 HCO 中提取的脉冲强度. 左右图框分别对应 7 fs, 6.7×10^{14} W/cm² 和 10 fs, 1.1×10^{15} W/cm² 高斯脉冲拟合的强度包络

Fig. 6. Schematic diagram of the HCOs^[124] and the ionization gating^[126]. (a) Left: the electric field of a two-cycle laser pulse (dashed line) with the corresponding HCO electron trajectories, calculated by the SFA. The grey scale indicates the relative intensity of emission trajectories. Right: using the quantum orbital model to isolate the harmonic spectrum and cut-off position corresponding to a single trajectory. (b) Calculated phase matching factor (blue line) at different laser pulse intensities (dashed line). The corresponding ionization of extent of the medium is represented by gray lines. Blue squares are pulse intensities extracted from the HCOs. The left and right frames correspond to the intensity envelopes fitted by the 7 fs, 6.7×10^{14} W/cm² and 10 fs, 1.1×10^{15} W/cm² Gaussian pulses, respectively.

2006 年, Sola 等^[133] 采用一套双折射光学器件 (图 7(a)) 首次实现了由 Tcherbakoff 等^[134] 提出的偏振选通的驱动光场. 其中, 特定厚度的石英片将入射线偏振脉冲分裂成两个具有延迟 δ 的正交线偏振脉冲 (线偏振与光轴夹角为 45°), 再经过零级 $\lambda/4$ 玻片后, 生成一组具有固定延迟的反向旋转的圆偏振脉冲对. 由此可以估计双圆偏振脉冲合成的“线偏振” (椭圆度 < 0.2) 时间区间^[135,136]:

$$\Delta = \varepsilon_0 \tau^2 / (\delta |\cos(2\beta)| \ln 2), \quad (2)$$

其中, ε_0 为高次谐波效率降低一半时的驱动脉冲椭圆率, τ 为驱动脉冲持续时间, δ 为时间延迟, β 用以表征脉冲通过零级 $\lambda/4$ 玻片的角度. 在相关工作中, 驱动光的脉宽 $\tau = 5$ fs 且进行了 CEP 锁定, Ar 气产生的孤立脉冲经过啁啾补偿^[137] 后脉宽可短至 165 as, 频谱为 25—50 eV. 同年, Sansone 等^[138]

通过 300 nm 的 Al 膜进行滤波和啁啾补偿, 利用偏振选通方法在 Ar 气中获得了中心能量约为 36 eV、脉宽为 130 as 的近单周期 SAP. 2009 年, Sansone 等^[139] 又应用偏振选通技术产生了光谱覆盖范围 60—140 eV 的超宽带谐波谱, 可支持产生脉宽小于 50 as 的 SAP. 2017 年, Li 等^[140] 将光参量啁啾脉冲放大 (optical parametric chirped pulse amplifier, OPCPA) 的 1.7 μm 、12 fs 少周期 NIR 激光^[141] 作为驱动脉冲, 利用偏振选通方法生成了脉宽短至 53 as、频谱宽度 100—330 eV 的 SAP. 由于锡膜滤波器仅能在低能部分 (< 200 eV) 提供足够的色散补偿, 脉宽无法进一步压缩到 20 as. 偏振选通在分离 SAP 方面十分有效, 但是驱动脉冲合成的线偏振区域与电场最大值并不重合, 因此该方法中阿秒脉冲的转化效率相对较低^[98,137].

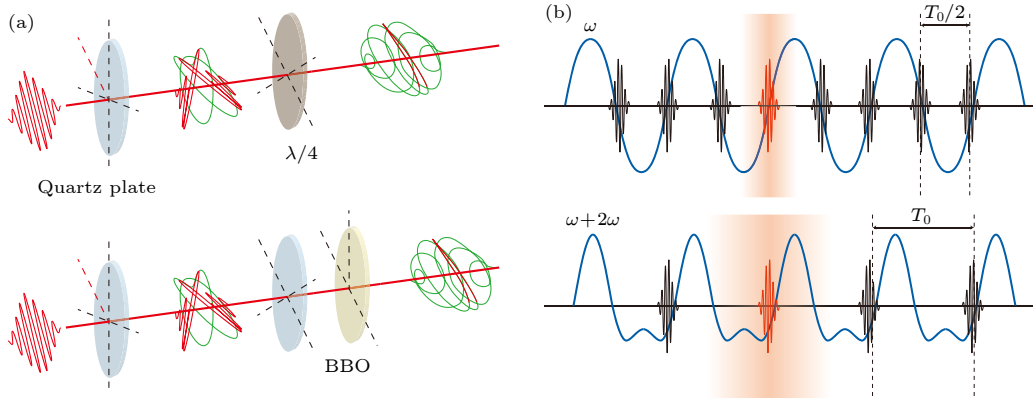


图 7 时间选通示意图^[98] (a) 偏振选通(上)和双光选通(下); (b) 多周期驱动光场(蓝线)产生的 APT, 单色驱动下的半个光周期脉冲间隔(上)和双色驱动下的完整光周期脉冲间隔(下)

Fig. 7. Schematic diagram of the temporal gating^[98]: (a) Polarization gating (top) and double optical gating (bottom); (b) APT is generated by a multi-cycle driving field (blue curves), the half photo-period pulse intervals under monochromatic drive (top) and the complete photo-period pulse intervals under two-color drive (bottom).

另一种解决方案是将偏振选通与双色光场结合, 称为 DOG^[142]. 当在一个线偏振的驱动脉冲中加入其二阶谐波弱场时, 相邻阿秒脉冲之间的时间间隔就变为基波的一个完整周期(图 7(b))^[143,144]. 这样的合成脉冲同偏振选通结合后, 达到偏振选通门控宽度(一个基波周期)所需的时间延迟 δ 明显减小^[142]. 由于在偏振选通中门控区域内外场强比值很大程度上取决于延迟, 所以合成光场可以有效地将门控区域限制在脉冲前缘的较低场强中, 达到降低气体原子基态的总体损耗并提高阿秒脉冲转换效率的目的. 2008 年, 在 CEP 锁定的 9 fs、790 nm 的基波脉冲支持下, Mashiko 等^[145] 通过马赫-曾德尔干涉仪 (Mach-Zehnder interferometer) 将二次谐波场加入到偏振选通场中实现了 DOG 方法, 并在氩气中产生了对应于支持 130 as 脉冲的超连续谐波谱, 证明了 DOG 方法在提高谐波转化效率方面的优势. 2009 年, Mashiko 等^[146] 又将传统的偏振选通光路(图 7(a) 上)中的 $\lambda/4$ 玻片用石英板和 BBO (barium borate) 晶体代替^[147], 利用该共线型 DOG 装置(图 7(a) 下)产生了可以支持 16 as 脉冲的超连续谐波谱. 但是受到反射镜带宽和残余色散的限制, 实验只得到了脉冲持续时间为 107 as 的孤立脉冲. 2012 年, Zhao 等^[148] 通过调节气体压力改变谐波相位匹配, 将谐波光谱有效地限制在带通滤波器的负色散区中. 在成功实现色散的有效补偿后, 他们合成了 67 as 的 SAP, 已接近其频谱所支持的极限 (62 as). 2020 年, Wang 等^[149] 在利用 DOG 方法实现了近 1 fs 的门控区间后, 使用 CEP 非稳

定的 NIR 驱动脉冲产生了 88 as 的 SAP.

在 DOG 放宽驱动光脉冲限制、提高谐波转换效率的方面取得成功的同时, 广义双光选通 (generalized double optical gating, GDOG)^[150–154] 和干涉偏振选通 (interferometric polarization gating)^[155,156] 也发展起来. 它们分别利用布儒斯特窗口(图 8(a)) 和两组迈克耳孙干涉仪(图 8(b)), 实现了将 DOG 中驱动脉冲在门控区域左右的圆偏振光变成椭圆偏振光的目的. 在这两种方法下, 驱动脉冲的脉宽限制被进一步放开到 30 fs. 同时在使用高强度、少周期驱动脉冲时, 原子基态的电离损耗能进一步降低^[153].

2.3.4 时空选通

前面提到的技术主要是利用驱动脉冲的电场随时间变化来实现选通, 而阿秒灯塔 (attosecond lighthouse)^[157] 方法是第一种利用驱动光场的时空耦合 (spatiotemporal couplings, STCs)^[158] 实现 SAP 分离的技术. STCs 最常见的来源是用于色散控制的脉冲压缩装置内的棱镜和光栅. 一般情况下, 共有 8 种一阶的 STCs, 而阿秒灯塔方法主要利用其中的波前旋转 (wave-front rotation, WFR)^[159] 效应(图 9(a2)). 通过在光束传播过程引入适当的角色散, 能在光束焦点处产生线性空间啁啾. 2012 年, Vincenti 等^[157] 提出利用 WFR 产生一组在空间角度上分离良好的 SAP 阿秒灯塔方案, 并从理论上给出了阿秒脉冲的空间分离角度:

$$\Delta\beta = v_r \Delta t, \quad (3)$$

其中 Δt 为相邻阿秒脉冲的时间间隔. $v_r = d\beta/dt$ 为

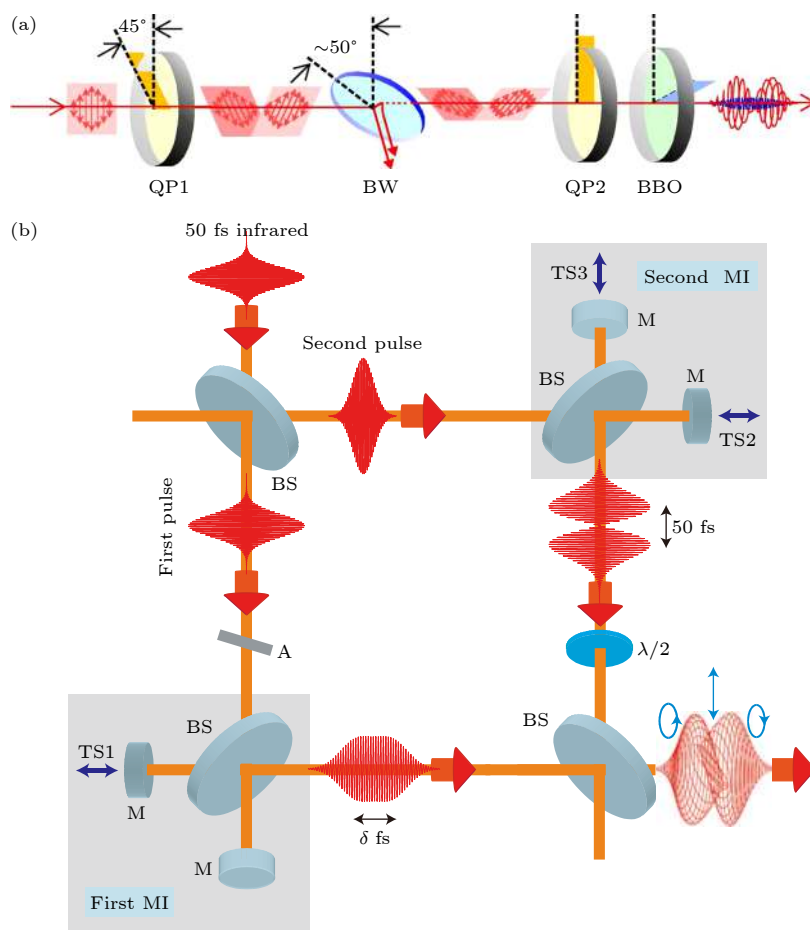


图 8 (a) 广义双光选通装置^[151] (光学器件由石英片 (QP1)、一个布儒斯特窗 (BW)、第二个石英片 (QP2) 和一个 BBO 晶体组成); (b) 双迈克尔逊干涉仪^[155] (BS, 分束器; M, 平面反射镜; TS1—3, 压电平移台; A, 光强衰减器; First M1 和 Second M2, 第一台和第二台迈克尔逊干涉仪)

Fig. 8. (a) Generalized double optical gating^[151] (The optics consist of a quartz plate (QP1), a Brewster window (BW), a second quartz plate (QP2), and a BBO crystal); (b) dual Michelson interferometer^[155] (BS, beam splitters; M, flat mirrors; TS1—3, piezoelectric translation stages; A, intensity attenuator; First M1 and second M2, the first and the second Michelson interferometers).

瞬时 WFR 速度, 由驱动脉冲自身参数决定, 受传播过程中的角频率色散控制. 同年, Wheeler 等^[160] 通过旋转聚焦前的棱镜实现了对 7 fs, 800 nm 驱动脉冲的 WFR 控制, 并在等离子体中产生了空间分离可控的 SAP(图 9(a)). 2013 年, Kim 等^[161] 首次在气体介质中展示了阿秒灯塔方法对 APT 的空间分离效果 (图 9(b)), 但是并没有对单个脉冲进行脉宽和相位的测量. 2015 年, Zhang 等^[162] 将波长 1.8 μm 激光作为驱动脉冲, 利用阿秒灯塔方法在氮气、氦气和氙气中观察到空间分离约 1.5 mrad 的连续高次谐波谱. 2016 年, Hammond 等^[163] 利用远场处的光圈分离出阿秒灯塔方法产生的单个 SAP, 并对其重新聚焦测得谐波频谱宽度接近 90 eV, 可支持脉宽极限为 48 as. 但由于 200 nm

铍滤波器没有完全补偿脉冲内的强线性啁啾, 实际测到的 SAP 宽度为 310 as.

3 阿秒脉冲在原子分子动力学研究中的应用

亚飞秒持续时间的 XUV 激光脉冲, 为直接观察原子分子动力学演化提供了有力的工具. 由于阿秒脉冲与驱动脉冲之间的同步性以及可控时间延迟, pump-probe 方案将谱学技术拓展到对原子分子动力学行为进行跟踪和测量的时间尺度上. 在过去的 20 年里, 阿秒 pump-probe 谱学已经广泛应用于研究激光诱导的超快动力学过程, 如价电子运动、光电离时间延迟、阿秒 CM 和非绝热分子动力学等.

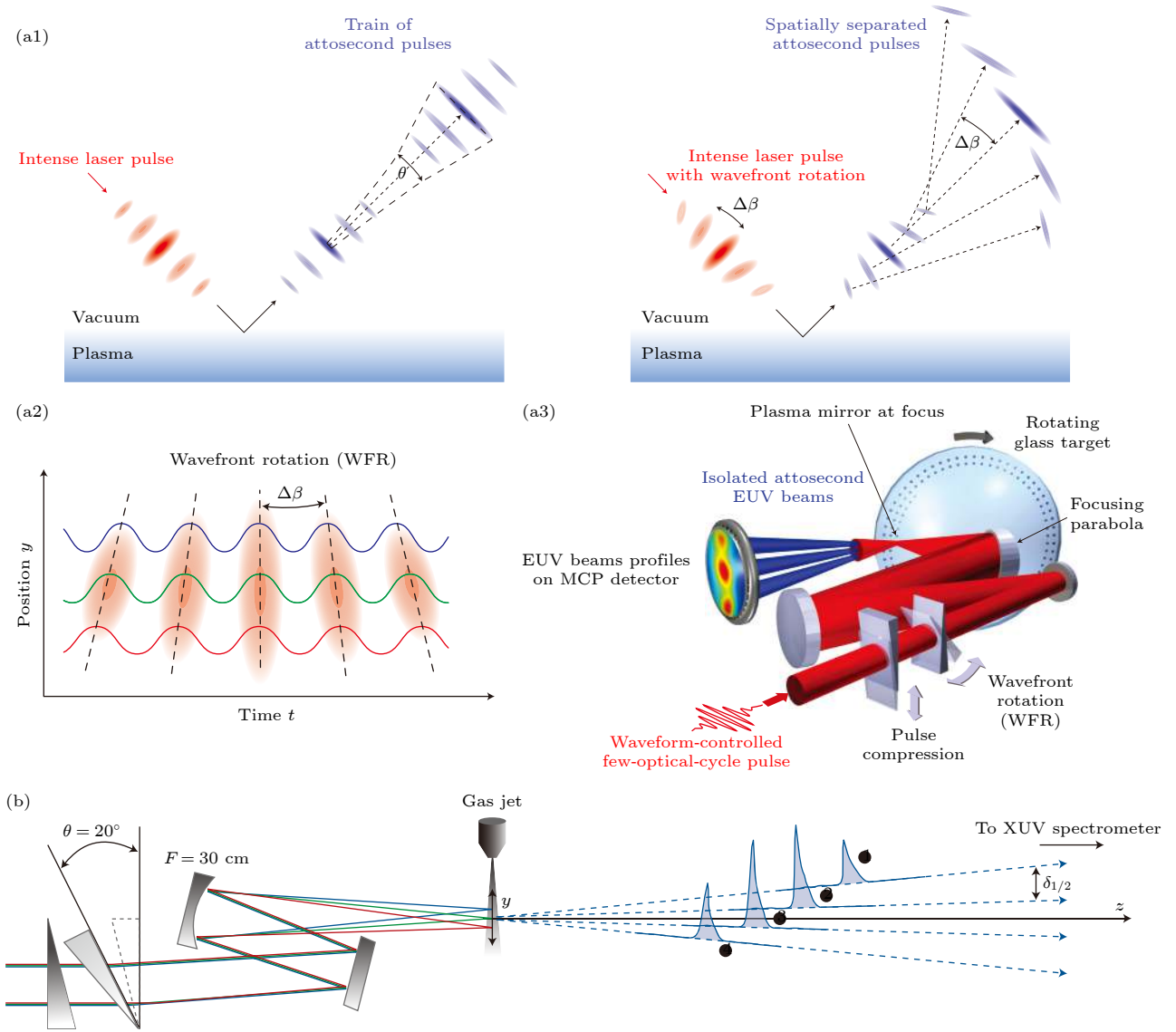


图9 阿秒灯塔示意图 (a) 等离子体镜中谐波产生的阿秒灯塔效应^[160] (a1) 阿秒脉冲沿垂直于焦点处激光波前的方向传播(左); WFR导致阿秒脉冲发生空间分离(右); (a2) WFR效应示意图; (a3) 等离子体镜阿秒灯塔实验示意图. (b) 气体靶阿秒灯塔实验示意图^[161], 角色散在聚焦前被一对错位楔形施加在激光束上在焦点产生空间啁啾, 激光脉冲每个半周期内产生的阿秒脉冲沿不同方向传播

Fig. 9. Schematic diagram of attosecond lighthouses. (a) Attosecond lighthouse effect in harmonics generated from a plasma mirror^[160]: (a1) The attosecond pulse propagates in a collimated beam perpendicular to the laser wavefront at the focal point (left); WFR leads to spatial separation of attosecond pulses (right); (a2) schematic diagram of the WFR effect; (a3) schematic diagram of the plasma mirror attosecond lighthouse experiment. (b) Schematic diagram of the gas target attosecond lighthouse experiment^[161]. Angular dispersion is imposed on the laser beam before focusing using a misaligned pair of wedges, leading to spatial chirp at the focus. The attosecond pulses generated in each half-cycle of the laser pulse propagate in different directions.

3.1 基于 HHG 的动力学成像

HHG 过程不仅是产生阿秒脉冲的基础, 还是理解光与物质相互作用的重要手段之一. HHG 过程中的隧穿和复合步骤已在“三步”模型和 SFA 方法中说明, 而其蕴含的原子分子轨道结构和电子波包 (electron wave-packet, EWP) 传播的信息也已证明^[164,165]. HHG 在频域上可以近似分解为^[166–168]

$$S(E_\Omega) = I(F, \omega)W(E)\sigma(E), \quad (4)$$

其中, S 为单粒子谐波发射的功率谱, I 是电场 F 和频率 ω 下的电离率, W 描述复合时动能为 E 自由电子的波包, σ 为复合截面, $E_\Omega = E + |E_0|$, E_0 为电离能. I 和 W 对靶分子的依赖度不高, 而复合截面 σ 主要取决于分子自身细节和所涉及的电子态, 这也是高次谐波谱具有动力学成像能力的原因. 通过高次谐波谱研究原子分子结构信息和超快

动力学的方法, 通常称为高次谐波光谱 (high harmonic spectroscopy, HHS)^[169] 方法.

在光电离过程中^[170], 库珀极小 (Cooper minimum)^[171] 出现在电离率最小的特殊光子能量处. 而在原子动力学研究方面, Ar 原子 HHS 中观测到的库珀极小证明了 HHG 过程中电子再复合是光电离逆过程. 2008 年, Minemoto 等^[172] 在 Ar 原子的 HHS 中观察到原子中电子结构决定的库珀极小, 对应光子能量约为 48 eV, 与光电离过程中的测量结果十分接近, 并从中成功提取出无场条件下原子的光复合截面 (photorecombination cross sec-

tion, PRCS). 2009 年, Wörner 等^[173] 实验证明 Ar 原子 HHS 中的库珀极小不受驱动光场强度影响 (图 10(a)), 能直接反映靶原子的无场电子结构. 2011 年, 对 Ar 原子 HHS 中库珀极小的进一步研究^[174,175] 表明在通过 HHS 方法提取原子电子结构信息时, 必考虑复合电子波包形状、相位匹配等条件的影响. 同年, Shiner 等^[176] 在 Xe 原子 HHS 还原的光电离截面 (photoionization cross-section, PICS) 中观测到 100 eV 附近的巨共振现象. 这是另一个证明 HHS 在提取原子电子结构信息方面应用的有力证据. 巨共振现象直接反映了出射电子与

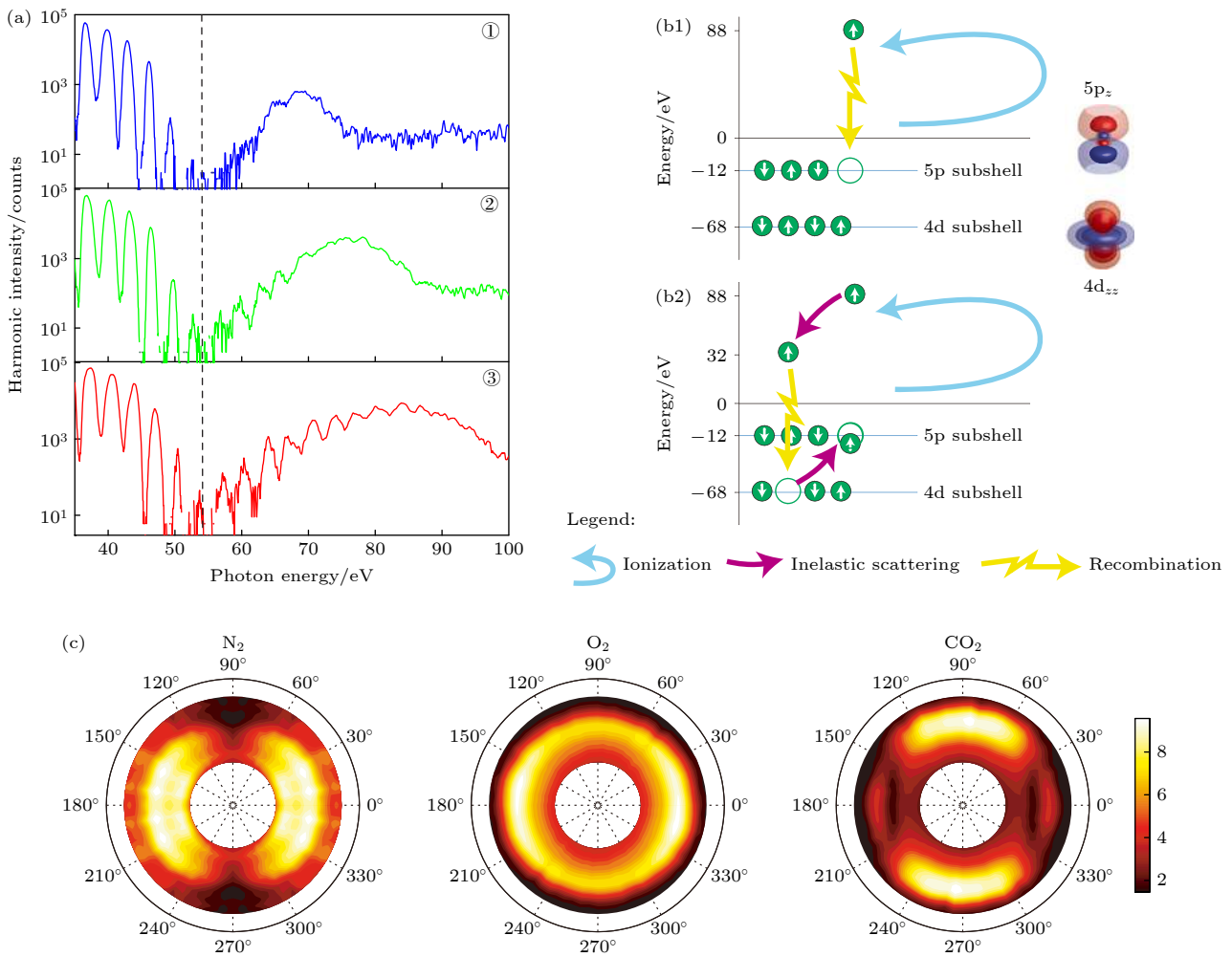


图 10 (a) 780 nm, 8 fs 驱动脉冲在 Ar 气中产生的 HHS^[173], 三个面板对应的激光强度分别为 ① 2.5×10^{14} W/cm², ② 2.9×10^{14} W/cm², ③ 3.5×10^{14} W/cm². (b) Xe 的多电子动力学示意图^[176], 电子以两种不同的方式与离子重新结合 (b1) 电子与 5p 壳层的空穴结合; (b2) 电子与 4d 壳层的空穴结合. (c) N₂, O₂ 和 CO₂ 的 HHS^[186], 其中 100 fs, 800 nm 的激光脉冲实现气相分子定向, 另一束更强的 800 nm 激光脉冲电离分子产生 HHS. 横轴表示高次谐波脉冲的偏振平行于分子轴, 半径范围为 0—50 的谐波阶次

Fig. 10. (a) HHS generated in argon using an 8 fs laser pulse centered at 780 nm^[173]. The three different panels correspond to the laser intensities 2.5×10^{14} W/cm² ①, 2.9×10^{14} W/cm² ②, 3.5×10^{14} W/cm² ③. (b) Schematic diagram of multi-electron dynamics in xenon^[176]. The electron recombines with the ion in two different ways: the electron recombines with the hole in 5p shell (b1) and in 4d shell (b2). (c) HHS of molecules N₂, O₂ and CO₂^[186]. The gas-phase molecules are aligned by a 100 fs, 800 nm laser pulse, and ionized by another stronger 800 nm laser pulse to generate HHS. The horizontal axis denotes that the high-harmonic pulse's polarization axis is parallel to the molecular axis, and the radius covers harmonic orders from 0 to 50.

内壳层束缚电子间的电子-电子关联^[176,177]. 它来源于“三步”模型中描述的场驱动复合电子存在两种与母核的复合路径. 一种是直接填充 5p 壳层的空穴 (图 10(b1)), 另一种是复合电子先通过库仑相互作用将 4d 内壳层电子激发到 5p 壳层空穴后, 再填充进内部 4d 壳层的空穴中 (图 10(b2)). 两种路径释放光子的能量相同 (约 100 eV), 却导致 100 eV 处无场 PICS 大大增强. 研究表明 HHS 通过返回电子与母离子的复合过程为研究原子内壳层电子结构和相关性提供了一种新的方法.

与原子中情况相同, HHS 也能包含靶分子的轨道结构特征^[169,178–180]. 在利用中等强度的激光脉冲实现分子的非绝热定向^[181,182]后, 不同分子体系下观测到的 HHS 随角度变化的独特结构表明其对分子中电子轨道结构的敏感性. Itatani 等^[183]于 2004 年在实现非绝热定向的 N₂ 气的 HHS 中, 开创性地提取出了 N₂ 的最高占据分子轨道 (highest occupied molecular orbitals, HOMO) 的结构, 该方法被称为分子轨道层析成像 (tomographic imaging of molecular orbitals). 单个原子或分子的 HHS 可以由偶极子加速度的傅里叶变换给出^[184], 利用缓变包络近似将偶极加速度和偶极矩联系起来^[183], HHS 强度 $I(\omega)$ 和相位 $\phi(\omega)$ 可表示为

$$I(\omega) \propto \omega^4 |\mathbf{d}(\omega)|^2, \quad (5)$$

$$\phi(\omega) = \arg[\mathbf{d}(\omega)]. \quad (6)$$

高次谐波发射来源于偶极子振荡, 其中包含从束缚态的 HOMO 波函数 ψ_g 向连续态波函数 ψ_c 的跃迁偶极矩 $\mathbf{d}(\omega)$. 在 HHG 过程中, 连续态 ψ_c 再返回电子波包由于横向扩展比小分子大得多, 因此可被平面波展开^[185],

$$\mathbf{d}(\omega) = a[k(\omega)] \int \psi_g(r)(er) \exp[ik(\omega)x] dr, \quad (7)$$

$$\psi_c = \int a(k) \exp[ik(\omega)x] dk, \quad (8)$$

其中, $k(\omega)$ 为谐波频率 ω 对应返回电子的波数 (动量), $\omega = k^2/2 + I_p$, $a[k(\omega)]$ 为复振幅^[52]. 在利用 Ar 原子的 HHS 完成 $a[k(\omega)]$ 的测定后, 由 N₂ 的 HHS 的振幅、相位、偏振确定 $\mathbf{d}(\omega)$, 能够还原出 N₂ 分子 HOMO 波函数的一维投影. 通过记录一系列分子轴和驱动脉冲偏振方向不同夹角 θ 的谐波振幅, 可以实现 N₂ 分子 HOMO 波函数的最终结果 (图 11(a)). 2008 年, Mairesse 等^[186]在 N₂, O₂ 和 CO₂ 分子的

不同取向下测量了一系列分子 HHS, 实验结果清晰展示了 HHS 对分子电子结构的依赖: N₂ 的谐波发射在分子轴与驱动脉冲偏振夹角 0° 时最强, CO₂ 在 90° 时最强, O₂ 的谐波发射随角度变化不明显 (图 10(c)). CO₂ 在 0° 时的谐波谱中出现振幅极小, 这归因于发射过程中的双中心干涉^[187–189]效应. 2009 年, Smirnova 等^[190]利用谐波干涉法^[191], 从两个同步非共线激光束在气体射流中产生的高次谐波源的远场干涉中, 实现了对 CO₂ 分子 HHS 中的振幅和相位信息的同时提取, 并利用谐波振幅和相位随夹角 θ 的变化分离了除 HOMO 外其他轨道的贡献. 2010 年, Haessler 等^[192]实现了从 N₂ 分子的 HHS 中对 HOMO (σ_g 对称) 和 HOMO-1 (π_u 对称) 轨道贡献的分离, 同时进行了 HOMO 和 HOMO-1 的分子轨道层析成像, 如图 11(b) 所示. 2011 年, Vozzi 等^[193]在实验中利用长波长的驱动激光有效控制了 CO₂ 分子高次谐波中的多轨道贡献, 将轨道层析方法中返回电子波包的平面波近似^[183]推广为考虑有效分子势下的散射态. 他们利用推广得到的广义分子轨道层析方法重建了 CO₂ 分子的 HOMO, 如图 11(c) 所示. 2013 年, Bertrand 等^[194]将谐波干涉法^[190,195] (测量相位-角度关系) 和混合气体干涉法^[196,197] (测量相位-谐波关系) 结合发展出链接阿秒相位干涉测量法 (linked attosecond phase interferometry, LAPIN). 该方法将相位作为谐波阶次和夹角 θ 的函数进行测量, 为分子轨道层析还原提供更加全面的基本信息.

利用分子轨道层析方法通过 HHS 中振幅、相位、偏振信息不仅能够开展分子轨道结构和电子动力学研究, 也证实了定向分子高次谐波偏振特性对轨道结构的强烈依赖^[198]. 2020 年, Uzan 等^[199]结合高次谐波干涉和偏振测量方法^[200]发展了定向分子多维高次谐波干涉测量技术. 该技术利用沿着正交双色激光 (基频 800 nm 和二次谐波 400 nm) 中基频场连续两个半周期发射的高次谐波产生干涉, 并通过双色场的子周期延迟实现对电子轨迹的二维控制. 例如通过对电离角、再散射角和自由电子的末态位置的控制, 可以实现电子电离过程和复合过程干涉切换和解耦; 通过测量每一个谐波阶次的两个偏振分量作为定向角 θ 和双色延迟 ϕ 的函数, 发现与基频场平行的偏振分量主要受到复合步骤的影响, 而垂直的偏振分量则受分子定向导致电离和复合步骤对称破缺的影响. 在该研究中还发现

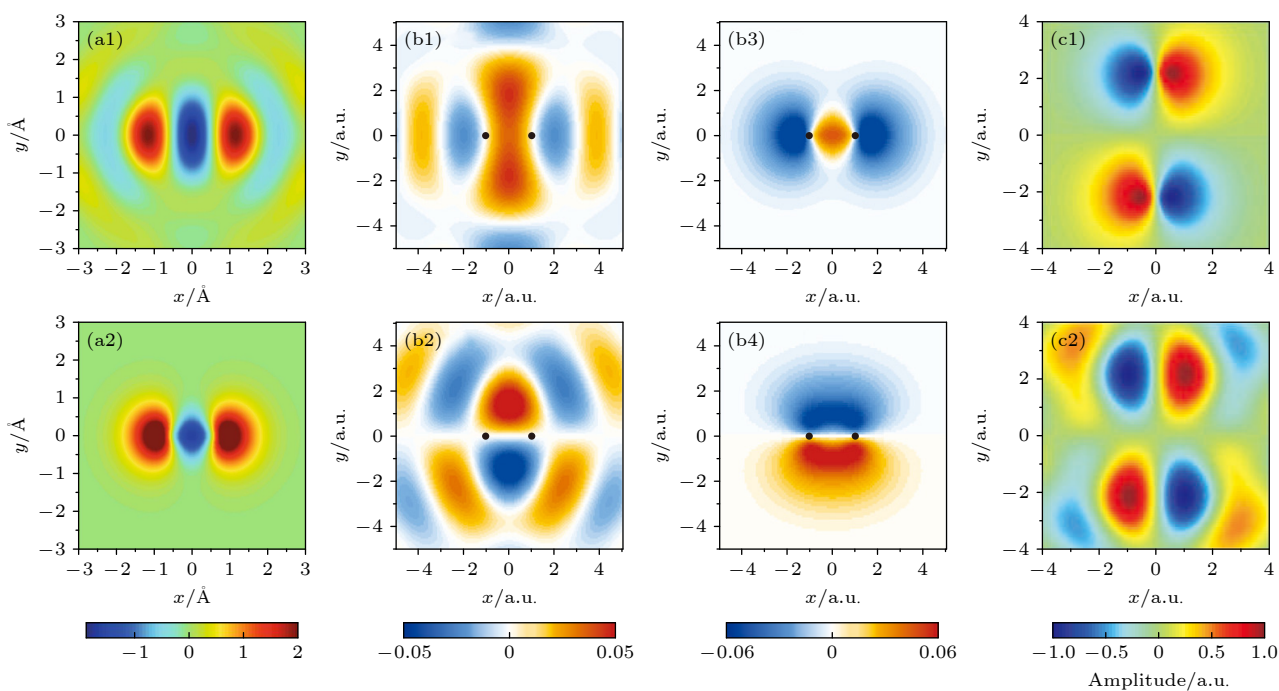


图 11 分子轨道层析成像 (a) N_2 分子的 HOMO 的图像^[183], 分子轴沿水平方向 (a1) 使用层析重建算法从一系列角度下实验 HHS 中得到的轨道波函数图像; (a2) 使用量子化学包计算的 $3\sigma_g$ 轨道波函数图像. (b) N_2 最高的两个分子轨道的重建图像^[192] (b1) 利用复合偶极子的虚部并施加 σ_g 对称性还原的 HOMO; (b2) 利用复合偶极子的实部并施加 π_u 对称性还原的 HOMO-1; (b3), (b4) 分别是用 GAMESS 计算的 Hartree-Fock HOMO 和 HOMO-1. (c) CO_2 中 HOMO 的轨道重建^[193], 分子轴沿垂直方向 (c1) 根据广义层析方法从实验数据中检索的 HOMO 图像; (c2) 用量子化学程序计算出的 CO_2 中 HOMO 的二维投影

Fig. 11. Tomographic imaging of molecular orbitals. (a) Image of HOMO of a N_2 molecule^[183], the molecular axis is horizontal: (a1) Shows the orbital wavefunction image derived from the experimental HHS at a range of angles using the tomographic reconstruction algorithm; (a2) shows the $3\sigma_g$ orbital wavefunction image calculated with a quantum chemistry package. (b) Reconstructed images of the highest two molecular orbitals of N_2 ^[192]: (b1) HOMO is recovered by using the imaginary part of the recombination dipole and imposing σ_g -symmetry; (b2) HOMO-1 is recovered by using the real part of the recombination dipole and imposing π_u -symmetry; (b3), (b4) Hartree-Fock HOMO and HOMO-1 calculated with GAMESS, respectively. (c) HOMO reconstruction of CO_2 ^[193], the molecular axis is vertical: (c1) HOMO image retrieved from the experimental data following the generalized tomographic procedure; (c2) bidimensional projection of the HOMO of CO_2 calculated with a quantum chemistry program.

第 24 次谐波强度随电离角的变化是由电离时的初速度而不是瞬时场强决定, 反映出隧穿电离的非绝热性质^[52]. 2021 年, Huang 等^[201] 在定向 CO_2 分子中开展了 HHS 和太赫兹 (THz) 波联合测量实验^[202], 将谐波强度与伴随发射的 THz 波^[203,204] 相关联. 由于 THz 产生时定向角 θ 与双色场相位延迟 ϕ 解耦, 经过优化的 THz 产率只随 ϕ 稳定振荡变化, 而与定向角 θ 无关, 故可作为高次谐波相位精确测量的相位参考. 实验从 HHS 中观测到不同分子轨道的参与: 测量到的偶次谐波产率可表示为不同定向分子的相干辐射之和, 并通过分析谐波发生时的电离相位、漂移相位和重组相位, 确定了三个贡献通道 (HOMO, HOMO-1 和 HOMO-2) 之间的相对相位差. 不同轨道的拟合幅值可以用来重建空穴动力学, 表明双色场可以控制空穴和连续电子波包的相干演化. 2022 年, Shu 等^[205] 对不同激光强度下

定向 CO_2 分子的 HHS 进行了测量, 观察到谐波光谱中存在两种极小结构. 其中位于光谱低能部分的极小结构不因激光强度变化而变动, 而位于高能部分的极小结构随着激光强度的增加向高能方向移动. 结合含时 Hartree-Fock (TDHF) 理论分析, 证明以 HOMO-2 和 HOMO-3 为代表的分子深层轨道间激光驱动耦合效应发挥着重要作用, 这意味着从 HHS 中获取更深层次分子轨道信息成为可能.

3.2 光电离时间延迟

阿秒激光的出现为研究基本物理问题提供了可能. 例如, 原子分子光电离过程是否需要时间? 如果需要, 该如何对时间进行实验获取? 物质波在通过势垒时隧穿时间^[206,207] 是否可以测量? 对这些问题的研究不仅能够直接推动阿秒技术的进步, 而且极大地加深了人们对量子力学基本概念的理解.

2012年, Dahlström 等^[208]比较了三种 pump-probe 方案(图 12). 图 12(a) 给出了传统 pump-probe 方案, 从不同延迟 probe 脉冲下的重复实验^[209,210]中实时提取出关于系统无场传播的时间信息. 在实验上, 最初被用于表征阿秒脉冲的阿秒条纹(attosecond streaking)技术(图 12(b))^[102,211,212]和双光子跃迁干涉阿秒拍重建(reconstruction of attosecond beating by interference of two photon transition, RABBIT)(图 12(c))^[213–215], 被用于测量各种原子分子中的超快光电离动力学.

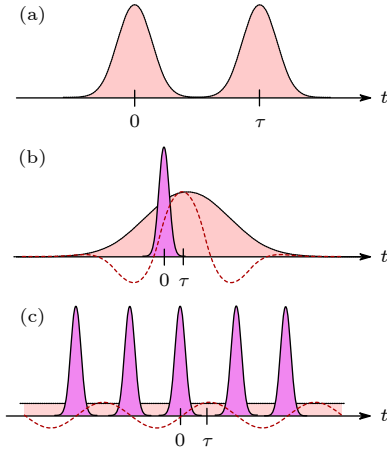


图 12 Pump-probe 方案^[208] (紫色区域表示阿秒 XUV 脉冲包络, 红色区域表示一个 probe 激光脉冲, 红色虚线是 probe 脉冲对应的电场) (a) 传统 pump-probe 方案, 从不同延迟 probe 脉冲下的重复实验^[209,210]中实时提取出关于系统无场传播的时间信息; (b) SAP 和少周期 IR 场的 pump-probe 实验; (c) APT 和单色 IR 场的 pump-probe 实验

Fig. 12. Pump-probe schemes^[208] (The purple area represents the attosecond XUV pulse envelope and the red area represents the one of the probing laser pulses, while the dotted red lines indicate the corresponding E -field): (a) Traditional pump-probe experiment, the temporal information about the field-free propagation of the system, can then be extracted in real time by repeating the experiment systematically for different delays of the probe pulse^[209,210]; (b) simultaneous pump-probe experiment between a SAP and a few-cycle IR field; (c) simultaneous pump-probe experiment between an APT and a monochromatic IR field.

3.2.1 阿秒条纹技术应用

2010年, Schultze 等^[216]利用阿秒条纹方法对 Ne 原子 2s 和 2p 轨道光电离相对时间延迟进行了测量. 实验发现 2s 电子波包先于 2p 电子形成, 两个轨道光电离相对延迟为 (21 ± 5) as. 在阿秒条纹实验中, 若光电离发生在吸收 XUV 光子的瞬间, 电子动量可以表示为

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}_0 - \mathbf{A}_{\text{probe}}(t_0), \quad (9)$$

其中, $\mathbf{p}_0 = \sqrt{2(\omega_{\text{xuv}} - I_p)}$ 表示电离后的初始动量, $\mathbf{A}_{\text{probe}}(t_0)$ 为电离时刻 t_0 时的 probe 光场的矢势. 若存在时间延迟 τ_S , 探测到的电子动量表示为

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}_0 - \mathbf{A}_{\text{probe}}(t_0 + \tau_S). \quad (10)$$

通过改变 pump 脉冲与 probe 脉冲延迟, 在 probe 脉冲偏振方向测量得到以时间延迟为变量的光电子动量谱直接对应 $\bar{\mathbf{A}}_z^{\text{probe}}(t_0 + \tau_S)$. 将该结果与 $\mathbf{A}_z^{\text{probe}}(t_0)$ 对比能够得到的时间移动就是光电离相对延迟 τ_S (图 13(a)). 该时间延迟中包含阿秒条纹实验中 XUV 脉冲和 IR 条纹场的贡献^[217–220], 可以分解为^[211]

$$\tau_S = \tau_{\text{EWS}}^{\text{C}} + \tau_{\text{CLC}}, \quad (11)$$

其中, $\tau_{\text{EWS}}^{\text{C}}$ 是在长程库仑势中的 Eisenbud-Wigner-Smith(EWS) 延迟, 简称为维格纳延迟 (Wigner delay)^[221,222], τ_{CLC} 为库仑-激光耦合时移^[211]. 后来, Isinger 等^[223]利用 RABBIT 技术以更高的时间分辨对 2s-2p 光电离相对时间延迟进行测量, 得到的能量依赖的时间延迟与 Schultze 等^[216]研究结果存在差异. 他们认为电子关联导致的 shake-up 过程^[224–226]的贡献是造成差异的主要原因, 基于该过程的相关理论计算结果与实验符合.

He 原子在吸收 XUV 光子的单电离过程可以分为直接电离和 shake-up 电离两种形式, 并在光电子能谱上呈现出两条明显的条纹(图 13(b)), 可以分别被用于提取直接电离时间延迟 τ_d 和 shake-up 电离时间延迟 τ_{su} . 2017年, Osslander 等^[227]首次利用阿秒条纹技术在 He 原子体系中观测到电子关联对电子动力学的影响. 实验结果表明, 两种电离路径时间延迟在 XUV 光子能量为 93.9, 97.2, 108.2, 113.0 eV 下, 差值 $\Delta\tau = \tau_{\text{su}} - \tau_d$ 分别为 -12.6, -10.6, -5.0, -4.9 as, 凸显出光电离时间延迟对光子能量的依赖. 理论分析显示直接电离时间延迟 τ_d 完全来源于 EWS 延迟和库仑-激光耦合时移, 而被单独提取出的 shake-up 电离时间延迟 τ_{su} 可以分解为

$$\tau_{\text{su}} = \tau_{\text{EWS}}^{\text{C}} + \tau_{\text{CLC}} + \tau_{\text{e-e}}, \quad (12)$$

其中, 相关性诱导时移 $\tau_{\text{e-e}} = \frac{1}{\omega_{\text{IR}}} \tan^{-1} \left(d_{\text{eff}} \frac{\omega_{\text{IR}}}{p_0} \right)$ 来源于 IR 场中发射电子和剩余电子间的相互作用. d_{eff} 为离子处于 shake-up 态的有效偶极矩, p_0 为初始动量. 由此可见, 相关性诱导时移 $\tau_{\text{e-e}}$ 与 IR 场振幅无关. 然而, 该方法提取 shake-up 电离时间延迟

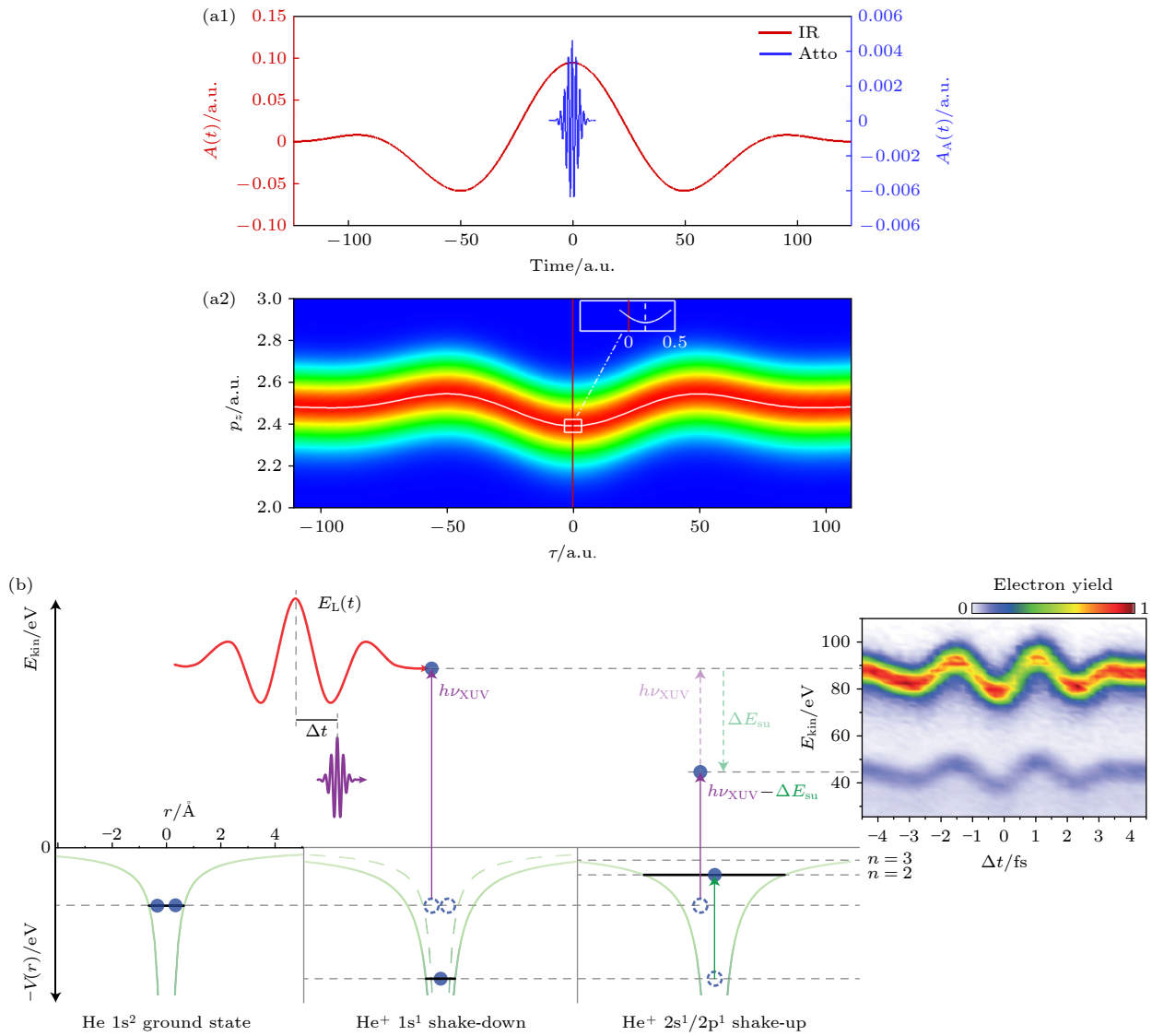


图 13 (a) 提取光电离时间延迟的阿秒条纹的典型图像^[3] (a1) 阿秒脉冲 (蓝线) 和条纹 IR 脉冲的矢势 (红线); (a2) 平行于激光偏振的电子动量分布 p_z 随两个脉冲之间时间延迟 τ 的变化 (中央的白色曲线代表瞬时动量分布 \bar{p}_z , 插图展示了 \bar{p}_z 和 IR 矢势间峰值的差异, 其为条纹时间延迟 τ_S). (b) He 原子的阿秒条纹实验^[227], 左侧表示结合能为 24.6 eV 的 He 原子基态; 中间表示 He $^+$ $1s^1$ (shake-down) 态离子势, 由于一个电子被电离, 剩余的电子会重新分布并占据更紧密的束缚态; 右侧表示 He $^+$ $2s^1/2p^1$ (shake-up) 态离子势, 一个电子射出, 剩余电子被激发到一系列 shake-up 态 n (插图表示 He 原子单电离阿秒条纹图像)

Fig. 13. (a) Typical configurations of the attosecond streaking for extraction of the photoionization time delay^[3]: (a1) The vector potential of the attosecond pulse (blue line) and the streaking IR pulse (red line); (a2) electron momentum distribution parallel to the laser polarization p_z as a function of the time delay τ between the two pulses, where the central white curve stands for the first moment of the momentum distribution \bar{p}_z . The insert shows the difference between the peaks of the \bar{p}_z and the IR vector potential is the streaking time delay τ_S . (b) Attosecond streaking spectroscopy of helium^[227]: Left panel is the helium ground state with a binding energy of 24.6 eV; the middle panel represents the ion potential of the He $^+$ $1s^1$ (shake-down) state (The ionic potential rearranges as result of an electron loss, and the remaining electron occupies a more tightly bound state); the right panel represents the ion potential of He $^+$ $2s^1/2p^1$ (shake-up) state, and the electron emission can be accompanied by the excitation of the remaining electron into one out of a series of shake-up states n (The inset shows the single ionization attosecond streaking image of helium).

τ_{su} 依赖于对 He 原子精确的理论描述, 无法推广应用到其他复杂的体系中。

3.2.2 RABBIT 技术应用

与阿秒条纹方法利用 SAP 和强 IR 场结合实现 pump-probe 过程不同, RABBIT 技术在实验上

采用 APT 和弱 IR 场耦合锁相装置。Klünder 等^[215] 于 2011 年利用该方法在 32—42 eV 光子能量区间测量了 Ar 原子 3s 和 3p 壳层单光电离的相对时间延迟, 分别约为 140 as (34 eV 光子能量) 和 -20 as (37 eV, 40 eV 光子能量), 具有明显的光子能量依赖性

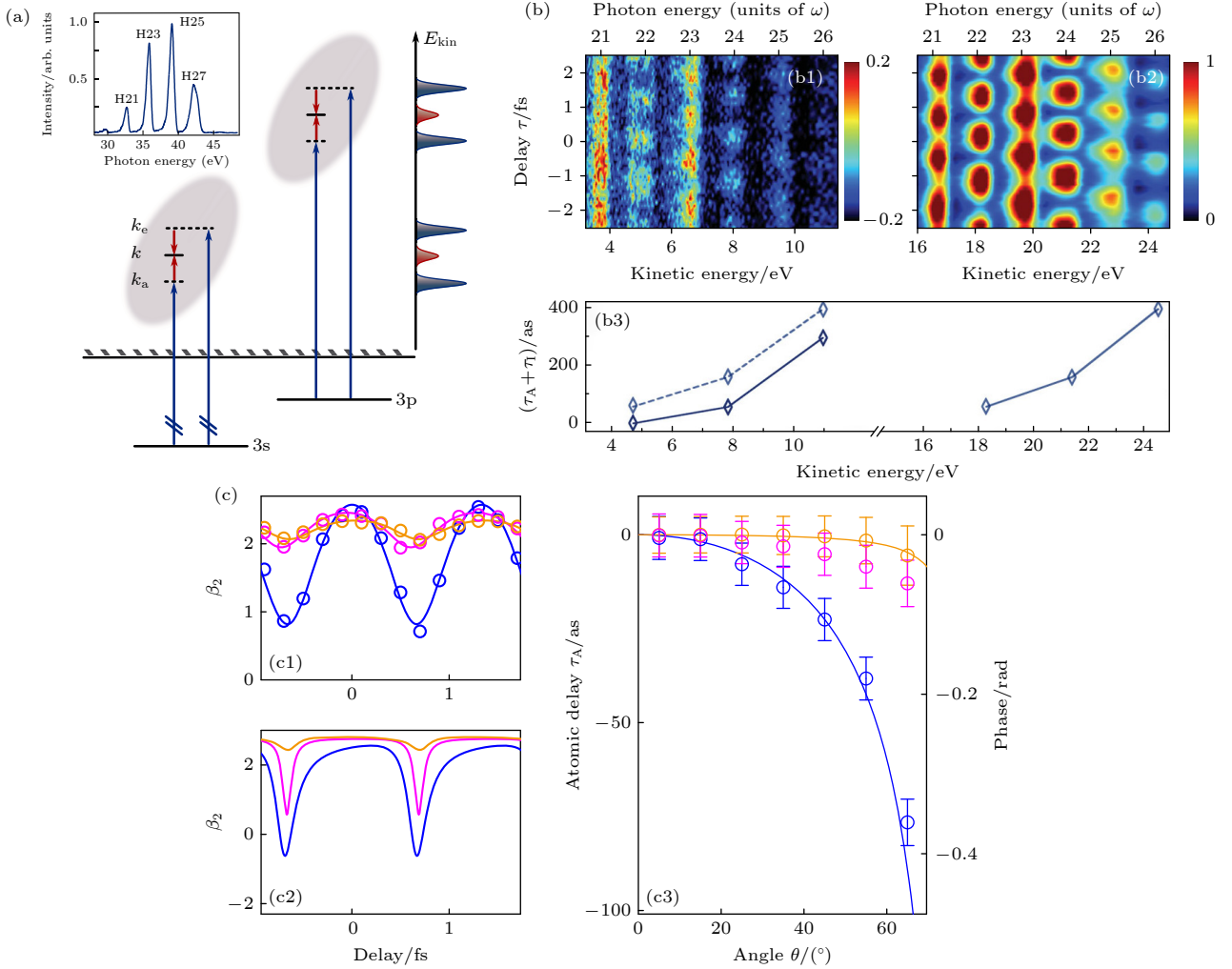


图 14 (a), (b) Ar 的 3s 和 3p 壳层相对电离时间延迟的测量^[215] (a) RABBIT 原理示意图; (b1), (b2) 分别为 3s 壳层和 3p 壳层释放的电子能谱随脉冲时间延迟的变化; (b3) 修正 Cr 滤波器群延迟后的 3p 壳层延迟 (虚线) 与 3s 壳层延迟的对比. (c) Ar 光电离时间延迟对电子出射角度的依赖和光电子角分布的延迟依赖的测量^[229] (c1), (c2) 分别为实验和理论中不对称参数 β_2 随延迟的变化; (c3) 实验 (圆圈) 和理论 (实线) 中原子延迟的角依赖关系 (不同的边带表示为 14ω (蓝色), 20ω (品红色) 和 22ω (黄色))

Fig. 14. (a), (b) Measurement of relative ionization time delay of 3s and 3p shells of Ar^[215]: (a) Schematic diagram of RABBIT principle; (b1), (b2) energy spectra as a function of pulse time delay from electrons liberated from the 3s shell and the 3p shell, respectively; (b3) after correcting the Cr filter group delay, comparison of the 3p shell delay (dashed line) versus the 3s shell delay. (c) The electron emission angular dependence of the photoionization time delay and the delay dependence of the photo-electron angular distribution are measured in Ar^[229]: (c1), (c2) Experimental and theoretical variation of the asymmetric parameters β_2 as a function of delay; (c3) experimental (circles) and theoretical (solid curves) angle dependence of the atomic delay (Different sidebands are indicated as 14ω (blue), 20ω (magenta) and 22ω (yellow)).

(图 14(b)). 在 RABBIT 技术中, 弱 IR 飞秒脉冲不能诱发原子的多光子电离, 连续态电子是通过 APT 引发原子的单光子电离过程产生, 而谐波光子诱导的电离过程却可以伴随着不同数量 IR 光子的吸收和发射 (图 14(a)). 因此, 在光电子能谱中来自不同量子路径的末态能量相同的电子导致了一系列边带的出现. 当高次谐波与 IR 脉冲间的延迟 τ 改变时, 给定壳层的边带信号将被调制^[208,213,215]:

$$S_{2q} = \alpha + \beta \cos[2\omega\tau - \Delta\phi_{2q} - \Delta\theta_{2q}], \quad (13)$$

其中, ω 为驱动 (IR) 脉冲频率, α 和 β 是两个与延迟 τ 无关的常数^[213]. $\Delta\theta_{2q}$ 表示由双光子电离过程引起的原子延迟. $\Delta\phi_{2q} = \phi_{2q+1} - \phi_{2q-1}$ 是相邻谐波 $(2q+1)\omega$ 和 $(2q-1)\omega$ 间的相位差. 在 Klünder 等^[215] 工作中,

$$\Delta\theta_{2q} = \tau_{\text{EWS}}^{\text{C}} + \tau_{\text{cc}}, \quad (14)$$

$\Delta\phi_{2q}$ 可通过同一实验中的 3s 和 3p 壳层光电离的测量结果消除. 而理论分析表明 $\Delta\theta_{2q}$ 中除了 EWS 延迟 $\tau_{\text{EWS}}^{\text{C}}$ 外, 还包含一部分电子在 IR 场和离子场

中运动产生的固有连续-连续延迟 τ_{cc} . Palatchi 等^[228]于 2014 年利用类似的方法将 He 原子的 RABBIT 延迟 $\tau_R = \Delta\phi_{2q} + \Delta\theta_{2q}$ 作为参考消除了来自 XUV 群延迟的阿秒啁啾 $\Delta\phi_{2q}$, 测量得到了 Ne, Ar 和 Kr 的相对 (He) 原子延迟 $\Delta\theta_{He}$. 虽然该方法无法实现绝对时间延迟差的测量, 但能够通过实验延迟差作为 XUV 光子能量的函数研究共振效应对原子延迟 $\Delta\theta_{He}$ 的影响.

2019 年, Busto 等^[229]将法诺倾向规则 (Fano's propensity rule)^[230]推广到 Ar 原子的 RABBIT 实验分析, 解释了光电离时间延迟的角度依赖性和光电子角分布的延迟依赖性 (图 14(c)). 在 RABBIT 技术原理中, 连续态电子吸收和受激发射一个 IR 光子的路径发生量子干涉形成一系列边带信号. 法诺倾向规则指出由于离心势能随角动量增加而增加, 因此电子角动量增加的路径更受青睐. 这种吸收和发射间的不对称性能够导致不完全的量子干涉, 直接影响 RABBIT 技术测量的边带信号调制谱. 值得一提的是, 在光电离时间延迟的角度依赖性方面实验结果与理论模拟也取得了良好的一致性 (图 14(c3)). 2022 年, Peschel 等^[231]通过对光电子的多通道分析扩展了角度分辨的 RABBIT 技术, 他们在 Ne 原子中实现了对单光子电离动力学的角动量通道分辨研究. 该方法有望推广应用于更复杂的原子系统, 能够实现角动量通道分辨的完整电离动力学重建.

3.3 阿秒电荷迁移

分子价电子轨道的排布在决定化学反应的结果中发挥着关键的作用, 追踪化学反应中电子密度的空间再分布^[232]一直是重要的科学目标之一^[13]. 2010 年, Sansone 等^[233]在 H_2 的 pump-probe 电离解离的碎片动能谱中观测到分子内由电荷局域化分布造成的影响. 在该实验中, 电子的时变局域化可以由 probe(IR) 脉冲启动, 这种局域化能够通过与之匹配的分子碎片的动量来确定. 例如, 当脉冲重叠时 (图 15(a1)), pump 脉冲直接激发产生 $2p\sigma_u$ 态, 在 IR 脉冲的影响下跃迁至 $Q_1^1 \Sigma_u^+(1)$ 双激发态, 而后 Q_1 态自电离到 $1s \sigma_g$ 态, 这一过程能够导致 $2p\sigma_u$ 态与 $1s\sigma_g$ 态解离通道发生干涉. 当脉冲延迟 6 fs 左右时 (图 15(a2)), IR 脉冲诱导解离波包在 $2p\sigma_u$ 态和 $1s\sigma_g$ 态间转移, 呈现出与脉冲重叠时

不同的干涉结构. 在解离碎片动能谱随脉冲延迟的变化中呈现出可被区分的干涉结构, 揭示了 fs 时间尺度下电子和核自由度之间的场诱导耦合效应. 2013 年, Neidel 等^[234]利用 IR 脉冲在 N_2 , CO_2 , C_2H_4 分子中诱导中性分子极化, 并通过另一束具有时间延迟的 XUV 脉冲电离的离子产率检测出时变偶极子的振荡行为, 进一步展现了该技术在观测电子密度超快空间变化的巨大应用前景.

理论上, XUV 脉冲对更复杂分子的突然电离会导致由分子结构驱动的电荷重新分布. 这种先于核骨架的任何重新排列的电荷流被称为 CM^[235,236], 可以在小于几飞秒 (纯电子响应) 和几十飞秒 (核与电子运动耦合) 的时间尺度上演化. 2012 年, Belshaw 等^[14]开创性地在芳香族氨基酸中观测到脉冲时间延迟 80 fs 处苯基的内转换过程, 以及脉冲同步时双电荷亚胺离子产率的急剧增加, 认为这些现象是分子内超快 CM 的可能标志. 2014 年, Calegari 等^[15,16]以更高的时间分辨 (0.5 fs) 测量了氨基酸中发生的纯电子动力学行为. 实验中, CM 由脉冲宽度 300 as, 能量 15—35 eV 的 SAP 触发, 由 4 fs 波形控制的 NIR 脉冲对电离解离过程进行探测. 实验发现双电荷亚胺离子产率随脉冲时间延迟呈现出周期为 4.3 fs 振荡变化 (图 15(b)). 振荡在时间尺度上要远快于分子中的核运动, 且不依赖特定的分子构型, 其主要来源是分子中胺官能团周围电荷密度的周期性变化.

除了 pump-probe 测量外, 在基于 HHS 方法的实验结果中也显示出 CM 的特征. Kraus 等^[237]在 2015 年基于 HCCI 分子的奇偶高次谐波以 100 as 时间分辨重建了 CM 的完整量子动力学 (图 15(c)), 实现了对该过程的激光控制. 在他们的工作中, 重建的阳离子的瞬时态布居和相对相位在 800 nm 和 1300 nm 脉冲下的显著差异直接反映了 CM 对电子隧穿位置和激光波长的依赖, 实验还发现了强场驱动电子动力学的非绝热性质. 2019 年, Jia 等^[238]将核运动的影响加入 CM 的量子动力学模拟中, 揭示了原子核导致 CM 的退相干和重相干机制^[239-241]. 2021 年, Folorunso 等^[242]在卤代烃链中理论研究了低频 CM 模式对分子几何和卤素原子序数的依赖, 并提出了利用分子几何和卤化控制分子 CM 的可能. 2022 年, He 等^[243]在基于分子奇偶高次谐波重建 CM 动力学方法的基础上, 将机器学习

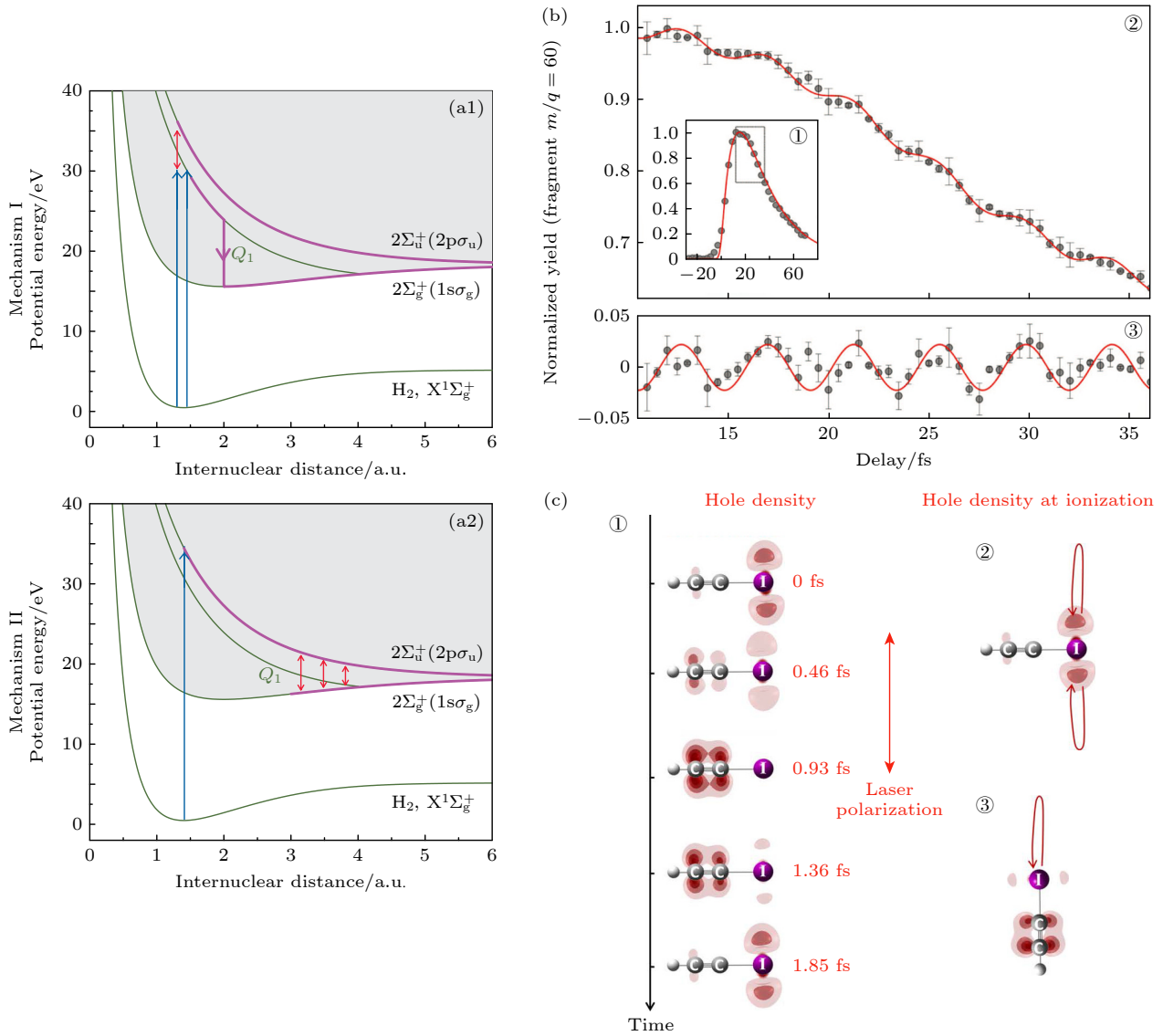


图 15 (a1), (a2) 分别表示 H_2 在 XUV-IR 作用下不对称电离解离的两种机制^[233], 蓝色和红色箭头分别表示 EUV 脉冲和 IR 脉冲的影响, 紫色线和箭头表示分子固有动力学. (b) 氨基酸中发生的纯电子动力学行为^[15]: ①二价亚胺离子的产量随 pump-probe 延迟的变化; ②位于①中虚线框所示的时间窗口内; ③表示实验数据同①中指数拟合曲线的差值, 红色曲线为频率为 0.234 PHz 的正弦函数. (c) 准无场 CM 的重建^[237]: ①重建的 HCCI 分子电离后随时间变化的电子动力学过程; ②, ③分别为在分子垂直排列和平行排列下, 电离时空穴密度的重建

Fig. 15. (a1), (a2) Represent the two mechanisms of asymmetric ionization dissociation of H_2 under the action of XUV-IR, respectively^[233]. Blue and red arrows indicate the effects of EUV and IR pulses respectively. Purple lines and arrows signify dynamics that is intrinsic to the molecule. (b) Pure electron dynamics occurring in amino acids^[15]: ① Yield of doubly charged immonium ion as a function of pump-probe delay^[15]; ② within the temporal window shown as dotted box in ①; ③ difference between the experimental data and the exponential fitting curve displayed in ①, red curve is a sinusoidal function of frequency 0.234 PHz. (c) Reconstruction of quasi-field-free CM^[237]: ① The reconstructed electron dynamics of HCCI molecule are displayed as a function of time after ionization; ②, ③ the reconstructed hole density at the time of ionization is shown for perpendicular and parallel alignment, respectively.

(machine learning, ML) 算法应用在从谐波信号中提取角度依赖单分子偶极矩的反卷积运算中, 降低了传统实验方案中由于分子定向不完全而造成的动力学信息损失, 成功在 N_2 和 CO_2 分子中实现不同固定分子角度下 CM 动力学成像. 该工作表明定向单分子偶极矩信息的提取对提高 CM 动力学

成像的精确度具有重要意义.

3.4 非绝热分子动力学

在分子动力学研究中, 势能面 (potential energy surfaces, PES) 是用来描述分子系统能量作为给定分子几何构型的多维函数. 在 BO 近似下, PES 的

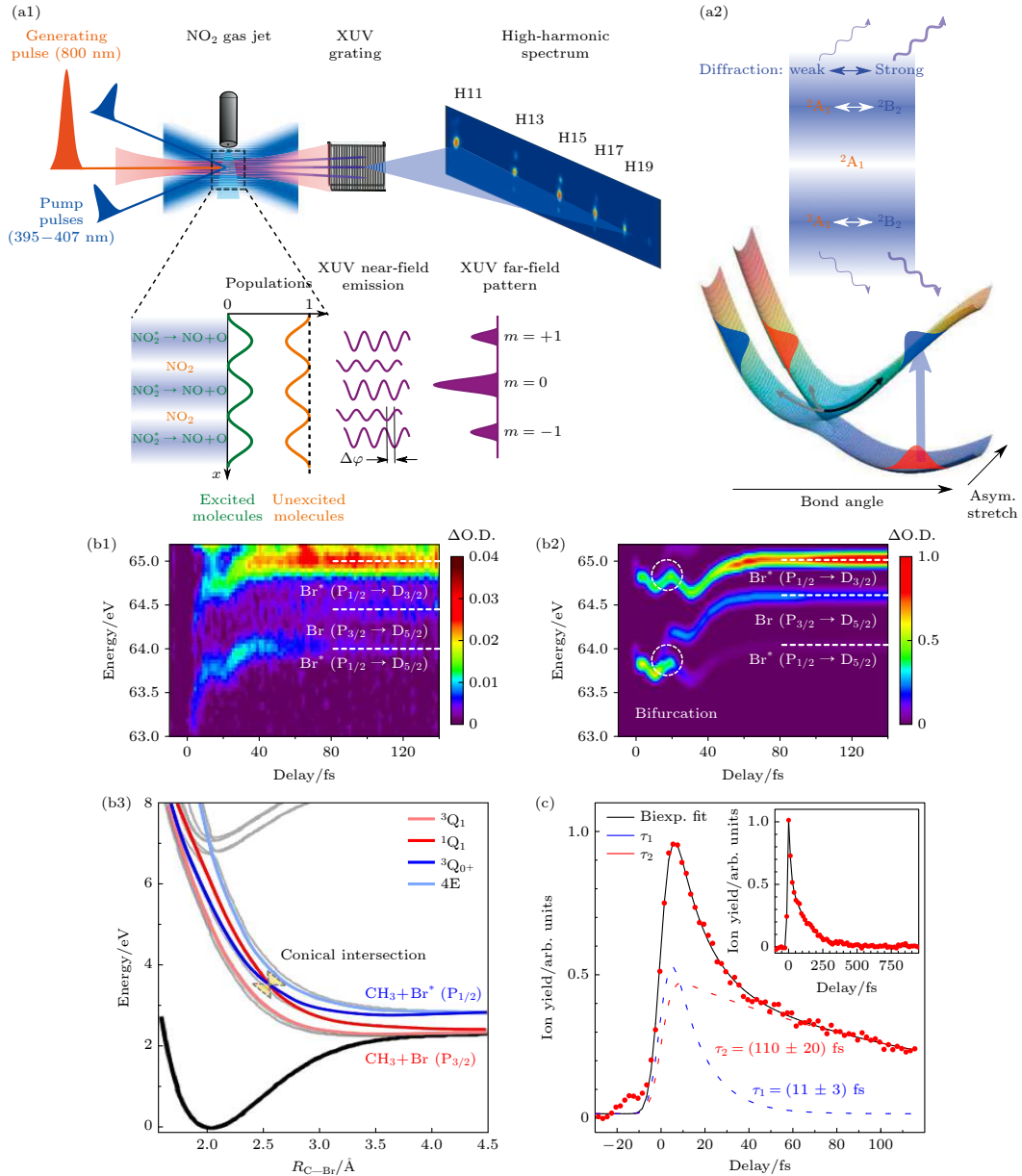


图 16 (a) HHG 瞬态光栅光谱实验装置^[249] (a1) 瞬态光栅实现激发态与非激发态分子布居的空间调制导致谐波在远场产生一阶衍射图像; (a2) 探测分子锥形交叉动力学中电子特性的原理, 激发态 (蓝色波包) 分子有强的衍射图样, 布居转移产生的基态 (红色波包) 分子衍射强度减弱. 上图为瞬态光栅的空间强度结构, 下图表示 NO_2 最低的两个势能面. (b1) CH_3Br 的中性激发态动力学 ATAS 图像^[258]; (b2) CH_3Br 中性激发态的 ATAS 动力学模拟^[258]; (b3) CH_3Br 的基态、激发态和 Rydberg 态势能曲线, 粗体彩色曲线表示构成激发带的主要态, 在 1Q_1 和 3Q_0 激发态间存在的 CIs 导致产物为 Br 和 Br^* 的两个解离路径之间的布局转移^[258]. (c) C_4H_3^+ 碎片产额随 XUV-VIS/NIR 延迟 (红点) 的变化^[255], 黑线是对实验数据的双指数拟合, 虚线表示两个时间尺度的贡献; 插图显示了 C_4H_3^+ 的大范围 pump-probe 扫描

Fig. 16. (a) Experimental setup for HHG transient grating spectroscopy^[249]: (a1) A first-order diffraction image of harmonics in the far field, caused by the spatial modulation of excited and unexcited molecular populations realized by transient gratings; (a2) principles for probing the electronic character of the molecule during the conical intersection dynamics, molecules in the excited state (indicated by blue wave packets) have a strong diffraction pattern, and the diffraction intensity of the ground state (indicated by red wave packets) generated by population transfer is decreased. The top illustrates the spatial intensity structure of the transient grating, and the bottom shows schematically the lowest two potential energy surfaces of NO_2 . (b1) ATAS image of the neutral excited state dynamics in CH_3Br ^[258]; (b2) simulated ATAS dynamics for neutral excited states in CH_3Br ^[258]; (b3) different potential energy curves for CH_3Br , the bold color curves represent the primary states that compose the excited state band, CIs exist between the 1Q_1 and 3Q_0 excited states that can lead to population transfer between the two dissociation paths with products Br and Br^* ^[258]. (c) C_4H_3^+ fragment yield as a function of the XUV-VIS/NIR delay (red dots)^[255], the bold black line is a biexponential fit to the data, and the dashed lines represent the contributions from the two timescales. The inset displays a long range pump-probe scan of C_4H_3^+ .

形状通常是通过求解 TDSE 得到: 由于电子运动和核运动的时间尺度差异巨大, 在求解 TDSE 时两种运动被分开考虑. 然而, 不同分子构型异质性的存在导致了锥形交叉 (conical intersections, CIs) 的出现, 在这些 PES 交叉点附近 BO 近似被认为是失效的 [5,244]. 当分子波包在传播过程中遭遇 CIs 时, 会产生在两个势能面上相干传播的叠加现象. 早期利用飞秒时间质谱技术对光诱导 DNA 碱基对无辐射衰变的研究 [245] 和利用超高分辨光谱观测技术对视紫红质异构化中 CIs 动力学研究 [246] 都发现了这种非绝热耦合 [247,248] 对复杂分子反应路径选择的重要影响.

近十年来, 基于 HHG 的阿秒脉冲光源的发展使得以更高的时间分辨率观测 CIs 附近的电子动力学成为可能. 2011 年, Wörner 等 [249] 报道了基于瞬态光栅 (transient grating, TG) [250,251] 产生的 HHS 分析结果, 实现了在 200 fs 内对 NO₂ 分子两个激发态间布居转移的追踪 (图 16(a)). 对绝热和非绝热布居导致的高次谐波干涉的实验结果揭示了 TG 技术结合 HHS 分析对 CIs 附近快速穿越行为的编码探测潜力. 2012 年, Ruf 等 [252] 在改变 pump 脉冲强度、中心波长和温度等条件下重复了 Wörner 等 [249] 的实验. 实验结果表明谐波衍射的振荡结构在时间测量上具有鲁棒性. 该研究强调了 TG 中编码的主要信息是分子在第一激发非绝热态上的振动, 进一步拓展了 TG 技术探测 CIs 附近分子动力学的方法.

利用 pump-probe 方案也能对分子中电子运动和核运动的剧烈耦合行为进行研究. 尤其是在对复杂分子的研究中, 由于 XUV 脉冲固有的宽谱特性和复杂分子中 PES 的密集交叉, 从时间分辨的质谱方法中提取目标分子耦合动力学信息需要实验与理论的紧密结合 [253]. 2017 年, Galbraith 等 [254,255] 利用多组态含时 Hartree (multi-configuration time-dependent Hartree, MCTDH) 方法详细分析了 C₆H₆ 分子光电离解离后 C₄H₃⁺ 碎片产额对脉冲延迟的依赖 (图 16(c)). 实验得到从 \tilde{E} 态布居通过 $\tilde{E} \rightarrow \tilde{D}$ CI 和从 \tilde{D} 态布居通过 $\tilde{D} \rightarrow \tilde{B}$ CI 的衰变时间分别为 $\tau_1 = (11 \pm 3)$ fs 和 $\tau_2 = (110 \pm 20)$ fs, 并指出在 $\tilde{E} \rightarrow \tilde{D}$ 内转换过程的初期, 存在 CM 纯电子动力学. 2019 年, Corrales 等 [256] 利用 pump-probe 时间延迟相关的 CH₃I 分子库仑爆炸提取 CIs 信息的方法. 他们以 probe 脉冲诱导的“动态库仑爆炸”

CH₃⁺ 碎片总动能释放 (kinetic energy release, KER) 为脉冲时间延迟函数并从中提取出 CIs 的信息. 2021 年, Boyer 等 [257] 基于 pump-probe 开展了多环芳烃解离产物 C_nH_x 基团离子产额的延迟时间依赖测量, 对多环芳烃的 CIs 非绝热动力学和振动弛豫动力学开展了研究. 研究结果表明振动弛豫机制的时间尺度随多环芳烃的尺寸增大而减小, 意味着在小的多环芳烃中, 波包在特定振动模式中布居时间更长, 具有更持久的相干性.

另一种观测分子非绝热动力学的方法为阿秒瞬态吸收谱 (attosecond transient absorption spectroscopy, ATAS). 在这种全光学实验方案中, 目标分子的电子状态变化反映在延迟依赖的 pump 诱导吸收光子变化的测量中. 2019 年, Timmers 等 [258] 在 CH₃Br 分子中采用 ATAS 方法研究了分子中性解离过程中的非绝热动力学 (图 16(b)). 他们利用 pump(NIR) 脉冲强场制备了中性激发态电子波包, 并利用调谐到 Br 的 M_{4,5} 边的 SAP 作为 probe 脉冲. 实验发现 ATAS 中约 16 fs 时间延迟处分子吸收特征的分裂来自部分 ³Q₀ 态波包通过 CIs 非绝热转移到 ¹Q₁ 态. 2020 年, Chang 等 [259] 也在烷基碘化物的 ATAS 中观测到 CIs 引起的吸收特征分裂现象. 该实验利用 pump(UV) 脉冲将分子激发到能够发生 CIs 的激发态, 以此研究了 *i*-C₃H₇I 和 *t*-C₃H₇I 分子在吸收特征分裂附近的差异, 以及各自 I 和 I* 对应解离通道吸收特征的强度差别. 2021 年, Chang 等 [260] 又利用 ATAS 开展了 CH₃I 中 CIs 非绝热动力学研究. 得益于 pump(UV) 的超短脉宽 (约为 20 fs), 实现了脉冲辅助解离过程中快速解析 CH₃I 的 CIs 动力学过程, 该实验成功观测到分子基态中发射相干振动波包, 得到波包分岔时间为 (15 ± 4) fs. 该值与模拟 CH₃I 瞬态过程的最少开关表面跳跃 (fewest-switches surface hopping, FSSH) [261] 分子动力学计算估计的时间 (13 fs) 基本一致 [262]. 同时, 测量得到分子基态波包振动频率 ($\omega = (538 \pm 7)$ cm⁻¹) 也与早期工作测量结果相符合. 2022 年, Chang 等 [263] 又在 CH₃I, C₂H₅I, *i*-C₃H₇I, *t*-C₄H₉I 中开展了类似的实验, 分别测量了不同烷基碘化物 (*R*-I, *R* = C_nH_m) 的波包分岔时间, 揭示了 C-I 键拉伸和 CCI 弯曲的振动现象. 大量相关研究表明高时间分辨 ATAS 在分子超快 CIs 动力学研究和相干核运动研究方面具有巨大的优势.

4 总结与展望

过去 20 年的时间里, 阿秒科学显示出其在追踪和控制电子动力学方面的巨大潜力. 但是受到阿秒光源低通量的限制, 目前的实验应用大多还是采用 XUV 脉冲和 IR 脉冲的 pump-probe 方案, 理想的全阿秒 pump-probe 实验有赖于高通量阿秒光源的进一步发展. 另一方面, 阿秒物理中的绝大多数实验对超快动力学的探测和重建都依赖于高精度的理论计算, 然而精确的理论描述只能在简单的原子分子系统中实现, 对更复杂系统的描述依赖理论与方法的进一步发展. 在可预期的未来, 高重复阿秒光源的普及也将进一步推动分子中符合谱学实验的发展; 另外能量扩展到 1 keV 光子能量的 SAP 的产生将使得阿秒时间分辨率和原子空间分辨率的研究成为可能.

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **21** L31
- [3] Peng L Y, Jiang W C, Geng J W, Xiong W H, Gong Q 2015 *Phys. Rep.* **575** 1
- [4] Pupeza I, Zhang C, Högnér M, Ye J 2021 *Nat. Photonics* **15** 175
- [5] Chini M, Beetar J E, Gholam-Mirzaei S 2022 *Prog. Opt.* **67** 125
- [6] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [7] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quantum Electron.* **33** 17
- [8] Chini M, Zhao K, Chang Z 2014 *Nat. Photonics* **8** 178
- [9] Gallmann L, Jordan I, Wörner H J, Castiglioni L, Hengsberger M, Osterwalder J, Arrell C A, Chergui M, Liberatore E, Rothlisberger U, Keller U 2017 *Struct. Dyn.* **4** 061502
- [10] Deshmukh P C, Banerjee S 2021 *Int. Rev. Phys. Chem.* **40** 127
- [11] Kheifets A S 2023 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **56** 022001
- [12] Calegari F, Trabattoni A, Palacios A, Ayuso D, Castrovilli M C, Greenwood J B, Decleva P, Martín F, Nisoli M 2016 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **49** 142001
- [13] Wörner H J, Arrell C A, Banerji N, et al. 2017 *Struct. Dyn.* **4** 061508
- [14] Belshaw L, Calegari F, Duffy M J, Trabattoni A, Poletto L, Nisoli M, Greenwood J B 2012 *J. Phys. Chem. Lett.* **3** 3751
- [15] Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, et al. 2014 *Science* **346** 336
- [16] Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, Belshaw L, De Camillis S, Frassetto F, Poletto L, Palacios A, Decleva P, Greenwood J B, Martín F, Nisoli M 2015 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **21** 1
- [17] Tehlar A, von Conta A, Arasaki Y, Takatsuka K, Wörner H J 2018 *J. Chem. Phys.* **149** 034307
- [18] Schnappinger T, de Vivie-Riedle R 2021 *J. Chem. Phys.* **154** 134306
- [19] Maiman T H 1969 *Essent. Lasers* **5** 134
- [20] Hargrove L E, Fork R L, Pollack M A 1964 *Appl. Phys. Lett.* **5** 4
- [21] Mocker H W, Collins R J 1965 *Appl. Phys. Lett.* **7** 270
- [22] Ippen E P, Shank C V, Dienes A 1972 *Appl. Phys. Lett.* **21** 348
- [23] Sutter D H, Steinmeyer G, Gallmann L, Matuschek N, Morier-Genoud F, Keller U, Scheuer V, Angelow G, Tschudi T 1999 *Opt. Lett.* **24** 631
- [24] Wirth A, Hassan M Th, Grguraš I, Gagnon J, Moulet A, Luu T T, Pabst S, Santra R, Alahmed Z A, Azzeer A M, Yakovlev V S, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2011 *Science* **334** 195
- [25] Hassan M Th, Wirth A, Grguraš I, Moulet A, Luu T T, Gagnon J, Pervak V, Goulielmakis E 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 111301
- [26] Silva F, Alonso B, Holgado W, Romero R, Román J S, Jarque E C, Koop H, Pervak V, Crespo H, Sola Í J 2018 *Opt. Lett.* **43** 337
- [27] Hassan M Th, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V, Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 66
- [28] Calegari F, Sansone G, Stagira S, Vozzi C, Nisoli M 2016 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **49** 062001
- [29] Howard A J, Cheng C, Forbes R, McCracken G A, Mills W H, Makhija V, Spanner M, Weinacht T, Bucksbaum P H 2021 *Phys. Rev. A* **103** 043120
- [30] Chen M C, Arpin P, Popmintchev T, Gerrity M, Zhang B, Seaberg M, Popmintchev D, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 173901
- [31] Popmintchev T, Chen M C, Bahabad A, Gerrity M, Sidorenko P, Cohen O, Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 2009 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **106** 10516
- [32] Li X F, L'Huillier A, Ferray M, Lompre L A, Mainfray G 1989 *Phys. Rev. A* **39** 5751
- [33] Macklin J J, Kimetec J D, Gordon C L 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [34] L'Huillier A, Balcou P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [35] Popmintchev T, Chen M C, Arpin P, Murnane M M, Kapteyn H C 2010 *Nat. Photonics* **4** 822
- [36] Yu X, Wang N, Lei J T, Shao J X, Morishita T, Zhao S F, Najjari B, Ma X W, Zhang S F 2022 *Phys. Rev. A* **106** 023114
- [37] Eberly J H, Su Q, Javanainen J 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 881
- [38] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, Kulander K C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 1599
- [39] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [40] Arnold C L, Isinger M, Busto D, Guénot D, Nandi S, Zhong S, Dahlström J M, Gisselbrecht M, l'Huillier A 2018 *Photoniques* 28
- [41] Gallagher T F 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2304
- [42] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
- [43] Papadogiannis N A, Witzel B, Kalpouzos C, Charalambidis D 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4289
- [44] Shan B, Chang Z 2001 *Phys. Rev. A* **65** 011804
- [45] Lai C J, Cirmi G, Hong K H, Moses J, Huang S W, Granados E, Keathley P, Bhardwaj S, Kärtner F X 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 073901

- [46] Shiner A D, Trallero-Herrero C, Kajumba N, Bandulet H C, Comtois D, Légaré F, Giguère M, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 073902
- [47] Eichmann H, Egbert A, Nolte S, Momma C, Welleghausen B, Becker W, Long S, McIver J K 1995 *Phys. Rev. A* **51** R3414
- [48] Weihe F A, Dutta S K, Korn G, Du D, Bucksbaum P H, Shkolnikov P L 1995 *Phys. Rev. A* **51** R3433
- [49] Strelkov V V, Gonoskov A A, Gonoskov I A, Ryabikin M Yu 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 043902
- [50] Fleischer A, Kfir O, Diskin T, Sidorenko P, Cohen O 2014 *Nat. Photonics* **8** 543
- [51] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, Knut R, Zusin D, Popmintchev D, Popmintchev T, Nembach H, Shaw J M, Fleischer A, Kapteyn H, Murnane M, Cohen O 2015 *Nat. Photonics* **9** 99
- [52] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov M Yu, L' Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [53] Amini K, Biegert J, Calegari F, et al. 2019 *Rep. Prog. Phys.* **82** 116001
- [54] Yost D C, Schibli T R, Ye J, Tate J L, Hostetter J, Gaarde M B, Schafer K J 2009 *Nat. Phys.* **5** 815
- [55] Power E P, March A M, Catoire F, Sistrunk E, Krushelnick K, Agostini P, DiMauro L F 2010 *Nat. Photonics* **4** 352
- [56] Zaïr A, Holler M, Guandalini A, et al. 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 143902
- [57] Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, Burgdörfer J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 253903
- [58] Kim I J, Kim C M, Kim H T, Lee G H, Lee Y S, Park J Y, Cho D J, Nam C H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 243901
- [59] Frumker E, Kajumba N, Bertrand J B, Wörner H J, Hebeisen C T, Hockett P, Spanner M, Patchkovskii S, Paulus G G, Villeneuve D M, Naumov A, Corkum P B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 233904
- [60] DiChiara A D, Sistrunk E, Miller T A, Agostini P, DiMauro L F 2009 *Opt. Express* **17** 20959
- [61] Luu T T, Yin Z, Jain A, Gaumnitz T, Pertot Y, Ma J, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3723
- [62] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2011 *Nat. Phys.* **7** 138
- [63] Ghimire S, Ndabashimiye G, DiChiara A D, Sistrunk E, Stockman M I, Agostini P, DiMauro L F, Reis D A 2014 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47** 204030
- [64] Vampa G, McDonald C R, Orlando G, Corkum P B, Brabec T 2015 *Phys. Rev. B* **91** 064302
- [65] Kruchinin S Yu, Krausz F, Yakovlev V S 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 021002
- [66] Yu C, Jiang S, Lu R 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1562982
- [67] Park J, Subramani A, Kim S, Ciappina M F 2022 *Adv. Phys. X* **7** 2003244
- [68] Ganeev R, Suzuki M, Baba M, Kuroda H, Ozaki T 2005 *Opt. Lett.* **30** 768
- [69] Flettner A, Pfeifer T, Walter D, Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G 2003 *Appl. Phys. B* **77** 747
- [70] Burnett N H, Baldis H A, Richardson M C, Enright G D 1977 *Appl. Phys. Lett.* **31** 172
- [71] Carman R L, Forslund D W, Kindel J M 1981 *Phys. Rev. Lett.* **46** 29
- [72] von der Linde D, Engers T, Jenke G, Agostini P, Grillon G, Nibbering E, Mysyrowicz A, Antonetti A 1995 *Phys. Rev. A* **52** R25
- [73] Norreys P A, Zepf M, Moustazis S, Fews A P, Zhang J, Lee P, Bakarezos M, Danson C N, Dyson A, Gibbon P, Loukakos P, Neely D, Walsh F N, Wark J S, Dangor A E 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 1832
- [74] Chin A H, Calderón O G, Kono J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 3292
- [75] Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M, Browne D A, Schafer K J, Gaarde M B, Reis D A 2016 *Nature* **534** 520
- [76] Langer F, Hohenleutner M, Huttner U, Koch S W, Kira M, Huber R 2017 *Nat. Photonics* **11** 227
- [77] You Y S, Reis D A, Ghimire S 2017 *Nat. Phys.* **13** 345
- [78] Korobenko A, Saha S, Godfrey A T K, Gertsvolf M, Naumov A Yu, Villeneuve D M, Boltasseva A, Shalaev V M, Corkum P B 2021 *Nat. Commun.* **12** 4981
- [79] Lou Z, Zheng Y, Liu C, Zhang L, Ge X, Li Y, Wang J, Zeng Z, Li R, Xu Z 2020 *Opt. Commun.* **469** 125769
- [80] Baykusheva D, Chacón A, Lu J, Bailey T P, Sobota J A, Soifer H, Kirchmann P S, Rotundu C, Uher C, Heinz T F, Reis D A, Ghimire S 2021 *Nano Lett.* **21** 8970
- [81] You Y S, Yin Y, Wu Y, Chew A, Ren X, Zhuang F, Gholam-Mirzaei S, Chini M, Chang Z, Ghimire S 2017 *Nat. Commun.* **8** 724
- [82] Liu J Q, Bian X B 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 213901
- [83] Fedotov A B, Gladkov S M, Koroteev N I, Zheltikov A M 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 363
- [84] Theobald W, Wülker C, Schäfer F P, Chichkov B N 1995 *Opt. Commun.* **120** 177
- [85] Ganeev R A, Redkorechev V I, Usmanov T 1997 *Opt. Commun.* **135** 251
- [86] Ganeev R A, Suzuki M, Baba M, Kuroda H 2005 *Appl. Phys. B* **81** 1081
- [87] Ganeev R A, Singhal H, Naik P A, Chakravarty U, Arora V, Chakera J A, Khan R A, Raghuramaiah M, Kumbhare S R, Kushwaha R P, Gupta P D 2007 *Appl. Phys. B* **87** 243
- [88] Ganeev R A, Bom L B E, Kieffer J C, Suzuki M, Kuroda H, Ozaki T 2007 *Phys. Rev. A* **76** 023831
- [89] Ganeev R A, Singhal H, Naik P A, Kulagin I A, Redkin P V, Chakera J A, Tayyab M, Khan R A, Gupta P D 2009 *Phys. Rev. A* **80** 033845
- [90] Ganeev R A, Suzuki M, Kuroda H 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 911
- [91] Ganeev R A, Naik P A, Singhal H, Chakera J A, Gupta P D 2007 *Opt. Lett.* **32** 65
- [92] Ganeev R A, Witting T, Hutchison C, Frank F, Tudorovskaya M, Lein M, Okell W A, Zaïr A, Marangos J P, Tisch J W G 2012 *Opt. Express* **20** 25239
- [93] Ganeev R A 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 2221
- [94] Hai B, Zhang S F, Zhang M, Dong D P, Lei J T, Zhao D M, Ma X W 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 234208 (in Chinese) [海帮, 张少锋, 张敏, 董达谱, 雷建廷, 赵冬梅, 马新文 2020 物理学报 **69** 234208]
- [95] Zhang M, Najjari B, Hai B, Zhao D M, Lei J T, Dong D P, Zhang S F, Ma X W 2020 *Chin. Phys. B* **29** 063302
- [96] Hai B, Zhang S F, Zhang M, Najjari B, Dong D P, Lei J T, Zhao D M, Ma X 2020 *Phys. Rev. A* **101** 052706
- [97] Lei J T, Yu X, Shi G Q, Yan S C, Sun S H, Wang Q J, Ding B W, Ma X W, Zhang S F, Ding J J 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 143201 (in Chinese) [雷建廷, 余璇, 史国强, 闫顺成, 孙少华, 王全军, 丁宝卫, 马新文, 张少锋, 丁晶洁 2022 物理学报 **71** 143201]
- [98] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nat. Photonics* **5** 655
- [99] Hänsch T W 1990 *Opt. Commun.* **80** 71
- [100] Antoine P, L' Huillier A, Lewenstein M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1234
- [101] Farkas Gy, Tóth Cs 1992 *Phys. Lett. A* **168** 447

- [102] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [103] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Tempea G, Spielmann C, Reider G A, Corkum P B, Krausz F 2001 *Science* **291** 1923
- [104] Kienberger R, Hentschel M, Uiberacker M, et al. 2002 *Science* **297** 1144
- [105] Chipperfield L E, Gaier L N, Knight P L, Marangos J P, Tisch J W G 2005 *J. Mod. Opt.* **52** 243
- [106] Xu L, Hänsch T W, Spielmann Ch, Poppe A, Brabec T, Krausz F 1996 *Opt. Lett.* **21** 2008
- [107] Jones D J, Diddams S A, Ranka J K, Stentz A, Windeler R S, Hall J L, Cundiff S T 2000 *Science* **288** 635
- [108] Apolonski A, Poppe A, Tempea G, Spielmann Ch, Udem Th, Holzwarth R, Hänsch T W, Krausz F 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 740
- [109] Christov I P, Zhou J, Peatross J, Rundquist A, Murnane M M, Kapteyn H C 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1743
- [110] Zhou J, Peatross J, Murnane M M, Kapteyn H C, Christov I P 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 752
- [111] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1251
- [112] Spielmann Ch, Burnett N H, Sartania S, Koppitsch R, Schmöger M, Kan C, Lenzner M, Wobrauschek P, Krausz F 1997 *Science* **278** 661
- [113] Paulus G G, Grasbon F, Walther H, Villoresi P, Nisoli M, Stagira S, Priori E, De Silvestri S 2001 *Nature* **414** 182
- [114] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [115] Nisoli M, Sansone G, Stagira S, De Silvestri S, Vozzi C, Pascolini M, Poletto L, Villoresi P, Tondello G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 213905
- [116] Baltuška A, Udem Th, Uiberacker M, Hentschel M, Goulielmakis E, Gohle Ch, Holzwarth R, Yakovlev V S, Scrinzi A, Hänsch T W, Krausz F 2003 *Nature* **421** 611
- [117] Protopapas M, Lappas D G, Keitel C H, Knight P L 1996 *Phys. Rev. A* **53** R2933
- [118] Le Kien F, Midorikawa K, Suda A 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3311
- [119] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. 2004 *Nature* **427** 817
- [120] Witting T, Frank F, Okell W A, Arrell C A, Marangos J P, Tisch J W G 2012 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 074014
- [121] Zhan M J, Ye P, Teng H, He X K, Zhang W, Zhong S Y, Wang L F, Yun C X, Wei Z Y 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 093201
- [122] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [123] Yakovlev V S, Scrinzi A 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 153901
- [124] Haworth C A, Chipperfield L E, Robinson J S, Knight P L, Marangos J P, Tisch J W G 2007 *Nat. Phys.* **3** 52
- [125] Pfeifer T, Jullien A, Abel M J, Nagel P M, Gallmann L, Neumark D M, Leone S R 2007 *Opt. Express* **15** 17120
- [126] Jullien A, Pfeifer T, Abel M J, Nagel P M, Bell M J, Neumark D M, Leone S R 2008 *Appl. Phys. B* **93** 433
- [127] Cao W, Lu P, Lan P, Wang X, Yang G 2006 *Phys. Rev. A* **74** 063821
- [128] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [129] Abel M J, Pfeifer T, Nagel P M, Boutu W, Bell M J, Steiner C P, Neumark D M, Leone S R 2009 *Chem. Phys.* **366** 9
- [130] Budil K S, Salières P, L'Huillier A, Ditmire T, Perry M D 1993 *Phys. Rev. A* **48** R3437
- [131] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [132] Möller M, Cheng Y, Khan S D, Zhao B, Zhao K, Chini M, Paulus G G, Chang Z 2012 *Phys. Rev. A* **86** 011401
- [133] Sola I J, Mével E, Elouga L, Constant E, Strelkov V, Poletto L, Villoresi P, Benedetti E, Caumes J P, Stagira S, Vozzi C, Sansone G, Nisoli M 2006 *Nat. Phys.* **2** 319
- [134] Tcherbakoff O, Mével E, Descamps D, Plumridge J, Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [135] Chang Z 2004 *Phys. Rev. A* **70** 043802
- [136] Strelkov V, Zair A, Tcherbakoff O, López-Martens R, Cormier E, Mével E, Constant E 2005 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **38** L161
- [137] Chang Z 2005 *Phys. Rev. A* **71** 023813
- [138] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [139] Sansone G, Ferrari F, Vozzi C, Calegari F, Stagira S, Nisoli M 2009 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **42** 134005
- [140] Li J, Ren X, Yin Y, Zhao K, Chew A, Cheng Y, Cunningham E, Wang Y, Hu S, Wu Y, Chini M, Chang Z 2017 *Nat. Commun.* **8** 186
- [141] Yin Y, Li J, Ren X, Zhao K, Wu Y, Cunningham E, Chang Z 2016 *Opt. Lett.* **41** 1142
- [142] Chang Z 2007 *Phys. Rev. A* **76** 051403
- [143] Mauritsson J, Johnsson P, Gustafsson E, L' Huillier A, Schafer K J, Gaarde M B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 013001
- [144] Merdji H, Auguste T, Boutu W, Caumes J P, Carré B, Pfeifer T, Jullien A, Neumark D M, Leone S R 2007 *Opt. Lett.* **32** 3134
- [145] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [146] Mashiko H, Gilbertson S, Chini M, Feng X, Yun C, Wang H, Khan S D, Chen S, Chang Z 2009 *Opt. Lett.* **34** 3337
- [147] Gilbertson S, Mashiko H, Li C, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 071109
- [148] Zhao K, Zhang Q, Chini M, Wu Y, Wang X, Chang Z 2012 *Opt. Lett.* **37** 3891
- [149] Wang X, Wang L, Xiao F, Zhang D, Lü Z, Yuan J, Zhao Z 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [150] Oron D, Silberberg Y, Dudovich N, Villeneuve D M 2005 *Phys. Rev. A* **72** 063816
- [151] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, Wang H, Khan S D, Chini M, Wu Y, Zhao K, Chang Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901
- [152] Gilbertson S, Wu Y, Khan S D, Chini M, Zhao K, Feng X, Chang Z 2010 *Phys. Rev. A* **81** 043810
- [153] Mashiko H, Oguri K, Sogawa T 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 171111
- [154] Wu Y, Cunningham E, Zang H, Li J, Chini M, Wang X, Wang Y, Zhao K, Chang Z 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 201104
- [155] Tzallas P, Skantzakis E, Kalpouzos C, Benis E P, Tsakiris G D, Charalambidis D 2007 *Nat. Phys.* **3** 846
- [156] Skantzakis E, Tzallas P, Kruse J, Kalpouzos C, Charalambidis D 2009 *Opt. Lett.* **34** 1732
- [157] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [158] Akturk S, Gu X, Bowlan P, Trebino R 2010 *J. Opt.* **12** 093001
- [159] Akturk S, Gu X, Gabolde P, Trebino R 2005 *Opt. Express*

- 13 8642
- [160] Wheeler J A, Borot A, Monchocé S, Vincenti H, Ricci A, Malvache A, Lopez-Martens R, Quéré F 2012 *Nat. Photonics* **6** 829
- [161] Kim K T, Zhang C, Ruchon T, Hergott J F, Auguste T, Villeneuve D M, Corkum P B, Quéré F 2013 *Nat. Photonics* **7** 651
- [162] Zhang C, Vampa G, Villeneuve D M, Corkum P B 2015 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **48** 061001
- [163] Hammond T J, Brown G G, Kim K T, Villeneuve D M, Corkum P B 2016 *Nat. Photonics* **10** 171
- [164] Marangos J P, Baker S, Kajumba N, Robinson J S, Tisch J W G, Torres R 2008 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10** 35
- [165] Peng P, Marceau C, Villeneuve D M 2019 *Nat. Rev. Phys.* **1** 144
- [166] Le A T, Lucchese R R, Lin C D 2013 *Phys. Rev. A* **87** 063406
- [167] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S, Starace A F 2009 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **42** 035601
- [168] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S, Emelin M Yu, Ryabikin M Yu, Starace A F 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 243901
- [169] Yun H, Yun S J, Lee G H, Nam C H 2017 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **50** 022001
- [170] Samson J A R, Stolte W C 2002 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **123** 265
- [171] Cooper J W 1962 *Phys. Rev.* **128** 681
- [172] Minemoto S, Umegaki T, Oguchi Y, Morishita T, Le A T, Watanabe S, Sakai H 2008 *Phys. Rev. A* **78** 061402
- [173] Wörner H J, Niikura H, Bertrand J B, Corkum P B, Villeneuve D M 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 103901
- [174] Higué J, Ruf H, Thiré N, Cireasa R, Constant E, Cormier E, Descamps D, Mével E, Petit S, Pons B, Mairesse Y, Fabre B 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053401
- [175] Farrell J P, Spector L S, McFarland B K, Bucksbaum P H, Gühr M, Gaarde M B, Schafer K J 2011 *Phys. Rev. A* **83** 023420
- [176] Shiner A D, Schmidt B E, Trallero-Herrero C, Wörner H J, Patchkovskii S, Corkum P B, Kieffer J C, Légaré F, Villeneuve D M 2011 *Nat. Phys.* **7** 464
- [177] Pabst S, Santra R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 233005
- [178] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2005 *Phys. Rev. A* **71** 061801
- [179] Torres R, Kajumba N, Underwood J G, Robinson J S, Baker S, Tisch J W G, de Nalda R, Bryan W A, Velotta R, Altucci C, Turcu I C E, Marangos J P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203007
- [180] Ramakrishna S, Seideman T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 113901
- [181] Seideman T 1995 *J. Chem. Phys.* **103** 7887
- [182] Stapelfeldt H, Seideman T 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 543
- [183] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pépin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [184] Burnett K, Reed V C, Cooper J, Knight P L 1992 *Phys. Rev. A* **45** 3347
- [185] Levesque J, Zeidler D, Marangos J P, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 183903
- [186] Mairesse Y, Levesque J, Dudovich N, Corkum P B, Villeneuve D M 2008 *J. Mod. Opt.* **55** 2591
- [187] Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, Caumes J P, Sansone G, Stagira S, Nisoli M, Torres R, Heesel E, Kajumba N, Marangos J P, Altucci C, Velotta R 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 153902
- [188] Kanai T, Minemoto S, Sakai H 2005 *Nature* **435** 470
- [189] Lein M, Hay N, Velotta R, Marangos J P, Knight P L 2002 *Phys. Rev. A* **66** 023805
- [190] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M Yu 2009 *Nature* **460** 972
- [191] Zerne R, Altucci C, Bellini M, Gaarde M B, Hänsch T W, L'Huillier A, Lyngå C, Wahlström C G 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 1006
- [192] Haessler S, Caillat J, Boutu W, Giovanetti-Teixeira C, Ruchon T, Auguste T, Diveki Z, Breger P, Maquet A, Carré B, Taïeb R, Salières P 2010 *Nat. Phys.* **6** 200
- [193] Vozzi C, Negro M, Calegari F, Sansone G, Nisoli M, De Silvestri S, Stagira S 2011 *Nat. Phys.* **7** 822
- [194] Bertrand J B, Wörner H J, Salières P, Villeneuve D M, Corkum P B 2013 *Nat. Phys.* **9** 174
- [195] Zhou X, Lock R, Li W, Wagner N, Murnane M M, Kapteyn H C 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 073902
- [196] Wagner N, Zhou X, Lock R, Li W, Wüest A, Murnane M, Kapteyn H 2007 *Phys. Rev. A* **76** 061403
- [197] McFarland B K, Farrell J P, Bucksbaum P H, Gühr M 2009 *Phys. Rev. A* **80** 033412
- [198] Levesque J, Mairesse Y, Dudovich N, Pépin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 243001
- [199] Uzan A J, Soifer H, Pedatzur O, Clergerie A, Larroque S, Bruner B D, Pons B, Ivanov M, Smirnova O, Dudovich N 2020 *Nat. Photonics* **14** 188
- [200] Mairesse Y, Higué J, Dudovich N, Shafir D, Fabre B, Mével E, Constant E, Patchkovskii S, Walters Z, Ivanov M Yu, Smirnova O 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 213601
- [201] Huang Y, Zhao J, Shu Z, Zhu Y, Liu J, Dong W, Wang X, Lü Z, Zhang D, Yuan J, Chen J, Zhao Z 2021 *Ultrafast Sci.* **2021** 1
- [202] Huang Y, Meng C, Wang X, Lü Z, Zhang D, Chen W, Zhao J, Yuan J, Zhao Z 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 123002
- [203] Lü Z, Zhang D, Meng C, Du X, Zhou Z, Huang Y, Zhao Z, Yuan J 2013 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **46** 155602
- [204] Zhang D, Lü Z, Meng C, Du X, Zhou Z, Zhao Z, Yuan J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 243002
- [205] Shu Z, Liang H, Wang Y, Hu S, Chen S, Xu H, Ma R, Ding D, Chen J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 183202
- [206] Steinberg A M, Kwiat P G, Chiao R Y 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 708
- [207] Steinberg A M 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 2405
- [208] Dahlström J M, L'Huillier A, Maquet A 2012 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **45** 183001
- [209] Pedersen S, Herek J L, Zewail A H 1994 *Science* **266** 1359
- [210] Tzallas P, Skantzakis E, Nikolopoulos L A A, Tsakiris G D, Charalambidis D 2011 *Nat. Phys.* **7** 781
- [211] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [212] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Uiberacker M, Yakovlev V, Scrinzi A, Westerwalbesloh Th, Kleineberg U, Heinzmann U, Krausz F 2002 *Nature* **419** 803
- [213] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou Ph, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
- [214] Muller H G 2002 *Appl. Phys. B* **74** s17
- [215] Klünder K, Dahlström J M, Gisselbrecht M, Fordell T, Swoboda M, Guénot D, Johnsson P, Caillat J, Mauritsson J, Maquet A, Taïeb R, L'Huillier A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 143002
- [216] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A L, Komminos Y,

- Mercouris Th, Nicolaides C A, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer A M, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V S 2010 *Science* **328** 1658
- [217] Kheifets A S, Ivanov I A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 233002
- [218] Nagele S, Pazourek R, Feist J, Doblhoff-Dier K, Lemell C, Tókési K, Burgdörfer J 2011 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **44** 081001
- [219] Zhang C H, Thumm U 2011 *Phys. Rev. A* **84** 033401
- [220] Nagele S, Pazourek R, Wais M, Wachter G, Burgdörfer J 2014 *J. Phys. Conf. Ser.* **488** 012004
- [221] Wigner E P 1955 *Phys. Rev.* **98** 145
- [222] Smith F T 1960 *Phys. Rev.* **118** 349
- [223] Isinger M, Squibb R J, Busto D, Zhong S, Harth A, Kroon D, Nandi S, Arnold C L, Miranda M, Dahlström J M, Lindroth E, Feifel R, Gisselbrecht M, L'Huillier A 2017 *Science* **358** 893
- [224] Bolognesi P, Avaldi L, Cooper D R, Coreno M, Camilloni R, King G C 2002 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **35** 2927
- [225] Kikas A, Osborne S J, Ausmees A, Svensson S, Sairanen O P, Aksela S 1996 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **77** 241
- [226] Svensson S, Eriksson B, Mårtensson N, Wendin G, Gelius U 1988 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **47** 327
- [227] Ossianer M, Siegrist F, Shirvanyan V, Pazourek R, Sommer A, Latka T, Guggenmos A, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Kienberger R, Schultze M 2017 *Nat. Phys.* **13** 280
- [228] Palatchi C, Dahlström J M, Kheifets A S, Ivanov I A, Canaday D M, Agostini P, DiMauro L F 2014 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47** 245003
- [229] Busto D, Vinbladh J, Zhong S, Isinger M, Nandi S, Maclot S, Johnsson P, Gisselbrecht M, L'Huillier A, Lindroth E, Dahlström J M 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 133201
- [230] Fano U 1985 *Phys. Rev. A* **32** 617
- [231] Peschel J, Busto D, Plach M, Bertolino M, Hoflund M, Maclot S, Vinbladh J, Wikmark H, Zapata F, Lindroth E, Gisselbrecht M, Dahlström J M, L'Huillier A, Eng-Johnsson P 2022 *Nat. Commun.* **13** 5205
- [232] Weinkauff R, Schanen P, Metsala A, Schlag E W, Bürgle M, Kessler H 1996 *J. Phys. Chem.* **100** 18567
- [233] Sansone G, Kelkensberg F, Pérez-Torres J F, et al. 2010 *Nature* **465** 763
- [234] Neidel Ch, Klei J, Yang C H, et al. 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 033001
- [235] Cederbaum L S, Zobeley J 1999 *Chem. Phys. Lett.* **307** 205
- [236] Remacle F, Levine R D 2006 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **103** 6793
- [237] Kraus P M, Mignolet B, Baykusheva D, Rupenyan A, Horný L, Penka E F, Grassi G, Tolstikhin O I, Schneider J, Jensen F, Madsen L B, Bandrauk A D, Remacle F, Wörner H J 2015 *Science* **350** 790
- [238] Jia D, Manz J, Yang Y 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 4273
- [239] Kuleff A I, Cederbaum L S 2007 *Chem. Phys.* **338** 320
- [240] Despré V, Golubev N V, Kuleff A I 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 203002
- [241] Vacher M, Bearpark M J, Robb M A, Malhado J P 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 083001
- [242] Folorunso A S, Bruner A, Mauger F, Hamer K A, Hernandez S, Jones R R, DiMauro L F, Gaarde M B, Schafer K J, Lopata K 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 133002
- [243] He L, Sun S, Lan P, He Y, Wang B, Wang P, Zhu X, Li L, Cao W, Lu P, Lin C D 2022 *Nat. Commun.* **13** 4595
- [244] Bucksbaum P H 2007 *Science* **317** 766
- [245] Schultz T, Samoylova E, Radloff W, Hertel I V, Sobolewski A L, Domcke W 2004 *Science* **306** 1765
- [246] Polli D, Altoè P, Weingart O, Spillane K M, Manzoni C, Brida D, Tomasello G, Orlandi G, Kukura P, Mathies R A, Garavelli M, Cerullo G 2010 *Nature* **467** 440
- [247] Jasper A W, Zhu C, Nangia S, Truhlar D G 2004 *Faraday Discuss.* **127** 1
- [248] Yarkony D R 2012 *Chem. Rev.* **112** 481
- [249] Wörner H J, Bertrand J B, Fabre B, Higuët J, Ruf H, Dubrouil A, Patchkovskii S, Spanner M, Mairesse Y, Blanchet V, Mével E, Constant E, Corkum P B, Villeneuve D M 2011 *Science* **334** 208
- [250] Mairesse Y, Zeidler D, Dudovich N, Spanner M, Levesque J, Villeneuve D M, Corkum P B 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 143903
- [251] Wörner H J, Bertrand J B, Kartashov D V, Corkum P B, Villeneuve D M 2010 *Nature* **466** 604
- [252] Ruf H, Handschin C, Ferré A, et al. 2012 *J. Chem. Phys.* **137** 224303
- [253] von Conta A, Tehlar A, Schletter A, Arasaki Y, Takatsuka K, Wörner H J 2018 *Nat. Commun.* **9** 3162
- [254] Trabattoni A, Klinker M, González-Vázquez J, Liu C, Sansone G, Liguerrri R, Hochlaf M, Klei J, Vrakking M J J, Martín F, Nisoli M, Calegari F 2015 *Phys. Rev. X* **5** 041053
- [255] Galbraith M C E, Scheit S, Golubev N V, Reitsma G, Zhavoronkov N, Despré V, Lépine F, Kuleff A I, Vrakking M J J, Kornilov O, Köppel H, Mikosch J 2017 *Nat. Commun.* **8** 1018
- [256] Corrales M E, González-Vázquez J, de Nalda R, Bañares L 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 138
- [257] Boyer A, Hervé M, Despré V, Castellanos Nash P, Loriot V, Marciniak A, Tielens A G G M, Kuleff A I, Lépine F 2021 *Phys. Rev. X* **11** 041012
- [258] Timmers H, Zhu X, Li Z, Kobayashi Y, Sabbar M, Hollstein M, Reduzzi M, Martínez T J, Neumark D M, Leone S R 2019 *Nat. Commun.* **10** 3133
- [259] Chang K F, Reduzzi M, Wang H, Poullain S M, Kobayashi Y, Barreau L, Prendergast D, Neumark D M, Leone S R 2020 *Nat. Commun.* **11** 4042
- [260] Chang K F, Wang H, Poullain S M, Prendergast D, Neumark D M, Leone S R 2021 *J. Chem. Phys.* **154** 234301
- [261] Tully J C 1990 *J. Chem. Phys.* **93** 1061
- [262] Wang H, Odelius M, Prendergast D 2019 *J. Chem. Phys.* **151** 124106
- [263] Chang K F, Wang H, Poullain S M, González-Vázquez J, Bañares L, Prendergast D, Neumark D M, Leone S R 2022 *J. Chem. Phys.* **156** 114304

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules*

Tao Chen-Yu¹⁾²⁾ Lei Jian-Ting¹⁾³⁾ Yu Xuan¹⁾²⁾ Luo Yan¹⁾⁴⁾
Ma Xin-Wen¹⁾²⁾ Zhang Shao-Feng^{1)2)†}

1) (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China*)

4) (*School of Physical Science and Technology, Hebei University, Baoding 071000, China*)

(Received 26 December 2022; revised manuscript received 3 February 2023)

Abstract

In the past two decades, the development of laser technology has made attosecond science become a cutting-edge research field, providing various novel perspectives for the study of quantum few-body ultrafast evolution. At present, the attosecond pulses prepared in laboratories are widely used in experimental research in the form of isolated pulses or pulse trains. The ultrafast changing light field allows one to control and track the motions of electrons on an atomic scale, and realize the real-time tracking of electron dynamics on a sub-femtosecond time scale. This review focuses on the research progress of ultrafast dynamics of atoms and molecules, which is an important part of attosecond science. Firstly, the generation and development of attosecond pulses are reviewed, mainly including the principle of high-order harmonic and the separation method of single-attosecond pulses. Then the applications of attosecond pulses are systematically introduced, including photo-ionization time delay, attosecond charge migration, and non-adiabatic molecular dynamics. Finally, the summary and outlook of the application of attosecond pulses are presented.

Keywords: high-order harmonic, attosecond science, pump-probe, ultrafast dynamics

PACS: 32.30.-r, 32.80.-t, 33.20.Xx, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.72.20222436

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFA1602500).

† Corresponding author. E-mail: zhangshf@impcas.ac.cn



阿秒脉冲的发展及其在原子分子超快动力学中的应用

陶琛玉 雷建廷 余璇 骆炎 马新文 张少锋

Development of attosecond pulses and their application to ultrafast dynamics of atoms and molecules

Tao Chen-Yu Lei Jian-Ting Yu Xuan Luo Yan Ma Xin-Wen Zhang Shao-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 053202 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222436

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222436>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

抽运-自旋定向-探测技术及其应用

Pump-orientation-probe technique and its applications

物理学报. 2018, 67(9): 097201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180244>

桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

物理学报. 2020, 69(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

优化组合激光场驱动原子产生高次谐波及单个超短阿秒脉冲理论研究

Theoretical study of high-order harmonics and single ultrashort attosecond pulse generated by optimized combination of laser field

物理学报. 2022, 71(23): 233204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221298>

2-甲基吡嗪分子激发态系间交叉过程的飞秒时间分辨光电电子影像研究

Intersystem crossing of 2-Methylpyrazine studied by femtosecond photoelectron imaging

物理学报. 2020, 69(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200092>

生物分子结合水的结构与动力学研究进展

Research progress of molecular structure and dynamics of biological water

物理学报. 2019, 68(1): 013101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181273>

专题: 阿秒物理

强激光与固体密度等离子体作用产生孤立阿秒脉冲的研究进展*

王云良^{1)†} 颜学庆^{2)3)4)‡}

1) (北京科技大学数理学院, 北京 100083)

2) (北京大学, 核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

3) (北京怀柔激光加速创新中心, 北京 101407)

4) (山西大学, 极端光学协同创新中心, 太原 030006)

(2022年11月26日收到; 2023年2月4日收到修改稿)

强激光与固体密度等离子体作用产生的阿秒脉冲具有强度高、脉宽短等优势, 因此吸引了很多研究者的注意. 由于超快过程的泵浦探测技术需要的是一个孤立的阿秒脉冲, 因此本文重点讨论了相对论强激光与固体密度等离子体作用产生孤立阿秒脉冲的几种物理机理. 最近的几个代表性工作表明, 强激光与固体密度等离子体作用还可以产生脉宽更短、强度更高的半周期阿秒脉冲. 半周期孤立阿秒脉冲在对原子、固体中的电子进行超快的非对称操纵或探测等方面具有重要的应用, 因此本文对半周期阿秒脉冲产生的理论机制、实验可行性、标定测量、及应用前景进行了深入的讨论.

关键词: 强激光, 固体密度等离子体, 半周期阿秒脉冲, 孤立阿秒脉冲**PACS:** 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.38.-r**DOI:** 10.7498/aps.72.20222262

1 引言

根据不确定关系, 在微观领域空间尺度越小, 微观粒子的波动性越明显, 能量不确定度越大, 相应的物理过程时间尺度越小. 由玻尔的半经典理论可知, 氢原子中基态电子在圆形轨道上角位移为1弧度的时间为原子单位时间, 约为24 as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), 那么气体或固体中原子的核外电子动力学时间尺度在阿秒量级. 因此, 阿秒脉冲在原子、分子、纳米结构中电子的超快动力学探测^[1-6]、阿秒非线性光学^[7-9]、单发全息成像^[10]等方面具有重要的应用.

激光与物质相互作用可以产生高次谐波, 如果

高次谐波间满足特定的相位匹配条件, 那么各谐波之间就可以相干叠加, 形成一个短脉宽、高强度的脉冲, 这是目前产生阿秒脉冲的主要方法. 激光与气体靶相互作用产生高次谐波的理论是著名的半经典三步模型^[11]. 实验上通过激光与稀有气体的相互作用已经可以成功地产生孤立阿秒脉冲^[12,13]. 然而, 为了避免气体被完全电离, 驱动激光的强度有一定的限制, 一般要小于 10^{15} W/cm^2 , 因此也限制了输出高次谐波的强度及产生的光子能量, 从而限制了脉冲宽度进一步缩短. 目前激光与稀有气体作用产生的孤立阿秒脉冲的峰值功率可以达到吉瓦, 脉冲能量可以到微焦^[9]. 高次谐波是典型的非线性光学过程. 如果进一步提高光强, 非线性效应可以进一步增强. 当激光强度达到相对论光强时,

* 国家自然科学基金 (批准号: 11974043, 11921006) 和国家重大科学仪器设备开发专项 (批准号: 2019YFF01014400) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ylwang@ustb.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: x.yan@pku.edu.cn

需要研究强激光与等离子体作用产生阿秒脉冲的新机制和规律. 研究强激光与固体密度等离子体相互作用产生高次谐波辐射问题时, 对激光强度没有限制, 即便是在需要考虑量子电动力学效应的超强激光驱动情况下, 依然可以产生阿秒脉冲^[14]. 激光强度越高, 非线性效应越强, 高次谐波的高频成份占比越大, 谐波相干叠加后产生的阿秒脉冲宽度会越短. 强激光与固体密度等离子体作用产生的阿秒脉冲宽度可以短到 10 as 以下, 峰值功率可以到百太瓦量级^[15], 光强可以达到 10^{22} W/cm² 甚至更高^[16]. 强激光和固体密度等离子体作用产生的阿秒脉冲可以满足泵浦探测技术的要求, 甚至有望产生光子能量达到兆电子伏量级的仄秒脉冲^[17].

因此, 由激光等离子体相互作用产生的高次谐波光源不仅在频谱范围上高于传统同步辐射光源, 而且可以控制其偏振方向^[18], 是一种超高强度、超短脉宽(阿秒乃至仄秒)的极紫外或 X 射线相干光源. 这种性质优异的光源可以帮助我们以史无前例的时间分辨率来研究超快动力学过程, 乃至开启原子核内部仄秒物理过程的研究. 在不久的将来, 激光等离子体相互作用产生的高次谐波脉冲将会是最明亮的极紫外光源之一. 如何提高高次谐波的级数, 并提高谐波的强度, 以得到脉宽短、强度高的阿秒脉冲是如今高次谐波辐射领域的研究目标之一^[19–25].

强激光与固体密度等离子体作用产生高次谐波的物理机理主要有相干尾场辐射、相对论振荡镜辐射、相干同步辐射、相干韧致辐射等. 在非相对论激光强度下 ($a_0 < 1$), 相干尾场辐射是高次谐波产生的主要成因 ($a_0 = eE_0/m_e\omega_0c$ 是激光的归一化振幅, 其中 e , m_e , c 分别是电子电量、电子质量和真空中的光速, E_0 和 ω_0 分别是激光的振幅和圆频率). 相干尾场辐射是指当一束激光斜入射至具有一定密度梯度分布的等离子体时, 在等离子体的反射方向会辐射出高次谐波. 它的形成可以用布鲁奈尔电子 (Brunel electrons) 的集体运动激发等离子体电子密度振荡来解释^[26,27]. 布鲁奈尔电子是被激光激发离开等离子体后, 在电场中经过加速后以一定的速度返回等离子体, 并在等离子体中维持该速度前进的电子. 这些电子可以形成一团密度极高, 厚度小至几纳米的高速运动的电子纳米团簇, 它将激发所经之处的局域等离子体振荡, 进而以类似于共振吸收逆过程的方式辐射出电磁波. 显然, 相干尾场辐射的谐波最高级数受限于等离子体振

动的本征频率, 即受到等离子体密度的影响.

当 $a_0 \geq 1$ 时, 相对论振荡镜机制在高次谐波的产生过程中占主导地位^[28–34]. 在这种情况下, 等离子体表面的电子团簇以相对论速度做振荡, 并像一面镜子一样反射入射的激光脉冲. 由于该镜子以相对论速度振荡, 反射光将伴随着显著的多普勒频移. Baeva, Gordienko, Pukhov 等理论提出了反射光强度和谐波级数之间的幂律关系 $I \propto n^{-8/3}$, 其截止频率与相对论因子有关 $\omega_r \propto \gamma^3$. 该模型假设等离子体中存在一个明显反射点, 电磁场可以被等效地认为是在该点处发生了全反射, 明显反射点边界条件是相对论振荡镜理论模型的基础. 后续的实验证实了该理论模型的预言^[35,36].

相干尾场辐射模型和相对论振荡镜模型还不足以解释激光与等离子体作用产生高次谐波过程中的全部现象. 研究发现, 在 $a_0 \gg 1$ 时辐射出的阿秒脉冲的强度会超过入射激光脉冲强度, 显然这不是激光被等离子体反射能够解释的. 同时这在理论上也意味着相对论振荡镜模型中的边界条件“明显反射点”假设失效了. Brügge 和 Pukhov^[37] 提出了一种新的理论模型来解释以上现象, 称为相干同步辐射. 其物理机理如下: 当相对论强度的激光入射至等离子体时, 真空-等离子体界面处的电子会在电场作用下周期性地形成高密度电子团簇, 并被迅速加速至接近光速, 同时在激光横向场的作用下获得横向加速度. 这样一团纵向速度接近光速, 并具有横向速度变化的超密纳米电子片能够产生强烈的同步辐射. Brügge 和 Pukhov 的模型指出, 相干同步辐射的辐射频谱是以 $-4/3$ 或 $-6/5$ (取决于横向电流在稳相点的泰勒展开结果) 的幂律衰减的, 辐射的截止频率由电子纳米团簇的相对论因子决定. 相比相对论振荡镜机制的 $-8/3$ 幂律衰减辐射频谱, 相干同步辐射幂律谱衰减得更为平缓. 根据傅里叶合成阿秒脉冲的原理, 更宽的频谱对应着时域上更窄的脉冲. 因此有望通过相干同步辐射机制获得强度更高、脉宽更窄的阿秒脉冲^[38–40].

激光和等离子体的作用过程是高度非线性的, 电子既有可能获得加速, 也有可能被减速. 因此电子也可以在减速过程中通过韧致辐射的方式辐射出阿秒脉冲. 文献^[41]发现, 波破发生以后电子的纵向动量迅速减小, 这时韧致辐射在电子的辐射过程中起主导作用. 这里对电子起减速作用的是电荷分离产生的静电场.

当强激光与固体密度等离子体作用时, 线偏振激光的有质动力正比于 $[1 - \cos(2\omega_0 t)]$. 有质动力驱动靶表面或者相对论电子片做相对论振荡, 其振荡频率是激光脉冲频率的 2 倍. 因此, 每半个激光周期就会产生一个纳米电子团簇, 相应地辐射出一个阿秒脉冲, 得到的是一个阿秒脉冲串. 但是, 一个孤立的阿秒脉冲对于泵浦探测技术等应用来说是必要的. 另外, 一个孤立的半周期阿秒脉冲在原子、分子、固体中的电子动力学的不对称操作探测中有重要应用. 基于高次谐波合成阿秒脉冲的原理, 在进行滤波时需要进行低频截断, 而高次谐波中低频成份的能量占比较大, 滤波会造成较大的能量损失. 那么, 不需要滤波而直接产生阿秒脉冲的机制是非常值得研究的. 因此本文的第 2 节重点讨论强激光与固体密度等离子体作用产生大振幅孤立阿秒脉冲的研究进展, 对其中几个代表性的物理机理进行详细的分析和讨论. 第 3 节着重讨论直接产生相对论强度的半周期阿秒脉冲的物理机理. 第 4 节给出向透射方向加速的相对论电子片形成的物理模型. 第 5 节进行总结和讨论.

2 孤立阿秒脉冲产生的物理机理

2.1 孤立阿秒脉冲产生的偏振门机制

偏振门机制首先是在研究激光与气体靶作用

产生孤立阿秒脉冲时提出的^[42-44], 后来又发展了干涉偏振门方案^[45,46]. Baeva 等^[47]的先驱性研究工作表明, 偏振门机制对超强激光与固体密度等离子体作用产生高次谐波的控制也同样有效. Yeung 等^[48]第一次在实验上直接证实了相干同步辐射机制中入射激光的椭偏度和高次谐波强度的关系. 如图 1 所示, 当入射激光的强度不变而椭偏度逐渐增大时, 透射方向高次谐波的产生将会受到极其显著的抑制. 当驱动激光是圆偏振时, 高次谐波几乎被完全抑制.

这里简要介绍高次谐波效率随椭偏度的增加而降低的物理机理. 当超强激光垂直作用于固体密度等离子体表面时, 电子受到垂直于靶表面的力主要是 $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$, 该力的振荡分量也主要来自于 $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$. 由于圆偏振激光强度包络是慢变的, 所以不论是振幅还是力的方向在一个激光周期内都是恒定的, 这会导致电子缺乏纵向上的振荡运动, 从而无法形成纳米电子团簇, 因此相干同步辐射被抑制. 同样地, 在相对论振荡镜机制中, 圆偏振激光正入射情况下的高次谐波辐射也几乎完全被抑制^[30]. 因而, 不论是相干同步辐射机制, 还是相对论振荡机制, 都可以通过控制入射激光脉冲的偏振态, 来控制高次谐波的辐射强度^[49,50].

如果能够控制驱动激光脉冲的偏振态, 使之仅在单个周期内呈现线偏振, 而在其余时间均为圆偏

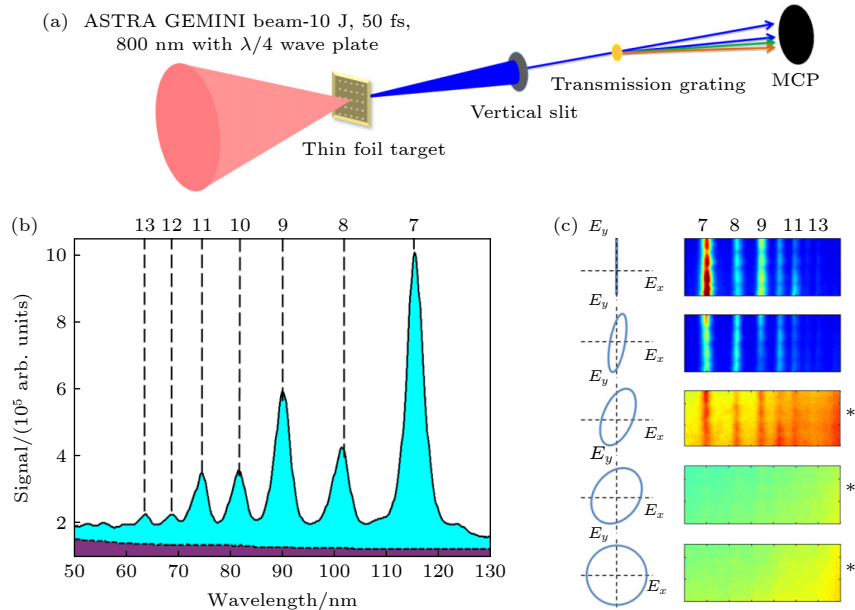


图 1 (a) 实验装置示意图; (b), (c) 高次谐波辐射强度随椭偏度的变化趋势^[48]

Fig. 1. (a) Sketch of the experimental setup; (b), (c) high-order harmonic generation varies with the ellipticity of the driven laser pulse reported in Ref. [48].

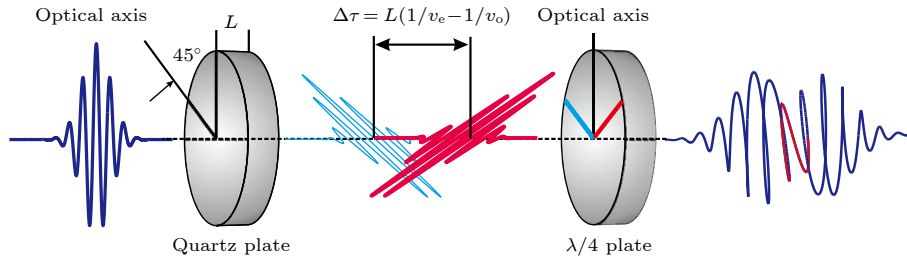


图 2 由两块双折射晶体组成的时变椭圆度脉冲产生方案^[51]

Fig. 2. Scheme for generating a pulse with time-varying ellipticity with quartz plate and $\lambda/4$ plate^[51].

振, 就可以实现仅在激光脉冲呈现线偏振态的周期内产生阿秒脉冲. 这就是孤立阿秒脉冲产生的偏振门机制. 下面较为详细地介绍一种偏振门方案. 该方案直接利用一对双折射晶体实现偏振态的控制^[51]. 如图 2 所示, 第一个双折射晶体的光轴方向与激光的线偏振方向夹角为 45° . 当线偏振激光通过第一个双折射晶体后分解成寻常光 (o 光) 和非寻常光 (e 光). 让第一个双折射晶体的厚度取某些特殊值, 以使得 o 光和 e 光的相位差为 $(2n + 1)\pi/2$, 即第一个双折射晶体是 n 阶四分之一波片. 由于 o 光和 e 光在双折射晶体中的速度不一样, 在通过第一个晶体后二者之间有了一个时间延迟 $\delta t = L/v_e - L/v_o$, 其中 v_o 和 v_e 分别是 o 光和 e 光的速度, L 是第一个晶体的厚度. 第二块晶体是一个 0 阶的四分之一波片, 它的光轴方向在 o 光和 e 光的偏振方向之间, 与 o 光和 e 光的夹角都是 45° . 当 o 光和 e 光穿过第二个双折射晶体后, 都变成了圆偏振光, 但是二者的重叠部分则变成线偏振光. 显然线偏振部分脉冲持续时间主要取决于第一块双折射晶体的厚度.

Yeung 等^[52] 提出了另一种新颖的偏振门方案来控制相对论强度激光的偏振状态, 并将其成功应用在了相对论振荡镜机制上, 其物理机理如图 3 所示: 两束非共线但平行传播的具有一定时间延迟的线偏振激光脉冲, 通过具有两个正交光轴的四分之一波片后, 分别变成了具有一定时间延迟的左旋圆偏振光和右旋圆偏振光, 它们在聚焦以后会在一定的空间和时间上重叠, 在重叠的时间段里变成了线偏振光. 实验证实了这种偏振门的方案对谐波谱的控制是有效的, 如果采用更短的激光脉冲有可能得到单个孤立的阿秒脉冲.

但是最近的研究表明, 在某些特定的靶条件下圆偏振激光并不总是抑制高次谐波的产生, 用低对比度的圆偏振激光压缩具有较长预等离子体的靶

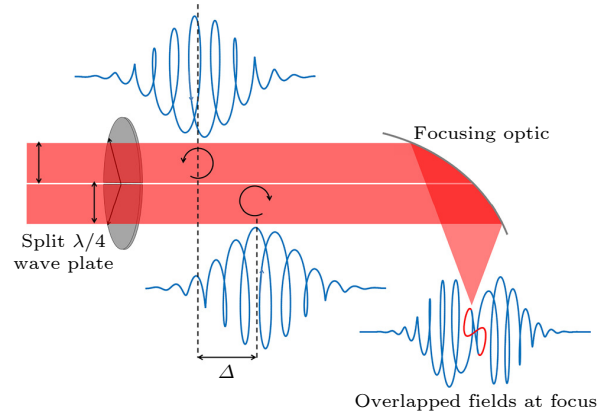


图 3 非共线偏振门控方案示意图. 具有正交光轴的四分之一波片将两个具有时间延迟的线偏振激光脉冲分别转换为左旋和右旋圆偏振激光脉冲. 这些脉冲在焦点处的重叠部分形成线偏振光^[52]

Fig. 3. Sketch of the noncollinear polarization gating method. A split quarter wave plate with orthogonal optical axes converts two delayed linearly polarized half beam pulses into left and right circularly polarized pulses. These pulses overlap at focus and create a linear gate^[52].

可以增强等离子体谐波的辐射^[53]. 激光脉冲斜入射时的高次谐波产生效率与椭圆度的依赖关系与垂直入射时的情况也是相反的. 考虑两个振幅相同、偏振方向正交的线偏振激光脉冲, 椭圆度定义为 $\varepsilon = \tan(\phi/2)$, 其中 ϕ 是两个偏振正交的激光脉冲的相位差. 当相位差为 π 的整数倍时, 合成脉冲的椭圆度为 0, 当相位差为 $\pi/2$ 时, 合成脉冲的椭圆度为 1. 模拟结果显示, 在斜入射情况下, 椭圆度越高电子纳米团簇越容易形成, 电子的相空间分布越规律^[54]. 如图 4 所示, 尽管斜入射情况下不同波段的谐波效率的最小值对应的椭圆度有所不同, 但是谐波效率在椭圆度为 1 时都达到最大值, 而且其最小值和最大值可以差三个数量级. 因此在斜入射情况下, 也可以通过偏振门方案产生一个孤立的阿秒脉冲. 与正入射情况不同, 在斜入射情况下一束线偏振激光通过一个四分之一波片之后就可以实现偏振门方

案. 偏振方向与光轴的夹角为 45° , 产生的 o 光和 e 光在交叠部分合成圆偏振, 这就形成了线偏振-圆偏振-线偏振的脉冲, 当该脉冲斜入射等离子体时, 可以只在圆偏振部分产生一个孤立的阿秒脉冲^[54].

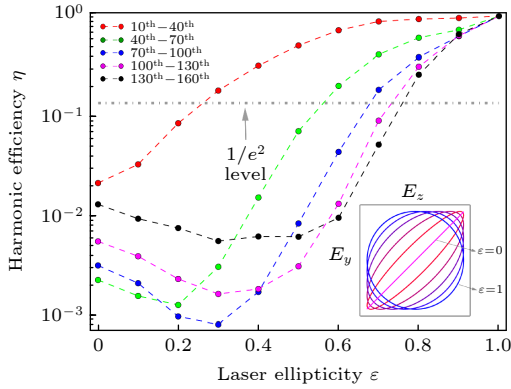


图 4 在不同谐波波段内, 谐波产生效率与驱动激光椭圆偏度的关系^[54]

Fig. 4. Harmonic generation efficiency varies with the driving laser ellipticity for different harmonic ranges^[54].

2.2 双色激光驱动产生孤立阿秒脉冲机制

双色激光脉冲的组合可以提高阿秒脉冲的品质. 通过调节双色激光脉冲的相位差、能量占比、偏振方向、脉宽等参数可以优化阿秒脉冲的强度和孤立性, 其规律在气体靶^[55-65]及固体靶^[66-68]中都进行了大量的研究. 当双色激光脉冲与固体密度等离子体作用时, 即便是加入少量的倍频光, 阿秒脉冲的强度与只有基频激光时相比也可以增加 10 倍以上^[68].

最近的研究表明, 基频激光与倍频激光组合的驱动脉冲与纳米薄膜靶作用可以产生一个孤立的阿秒脉冲^[69]. 这种双色激光脉冲产生孤立阿秒脉冲的机制很大程度上取决于它的独特波形. 如图 5 所示, 在相位差为 π 的情况下, 双色激光脉冲强度具有强弱交替的波形. 在强周期中, 脉冲波形变得更陡峭, 上升和下降都更快. 而在弱周期中, 在大约 0.4 个周期的时间段内, 脉冲的强度接近不变. 当激光的弱周期部分与靶相互作用时, 有质动力较小, 电子并没有被整体推出靶外, 所以无法形成致密的相对论电子片. 而当强周期激光与靶相互作用时, 由于有质动力较大, 几乎把所有电子都推出靶外, 所以整个电子团簇感受到的离子施加的静电场力几乎是相同的, 但是激光的有质动力是指数衰减的, 因此整个电子团簇后沿的电子比前沿的电子感

受的合力大, 当后沿电子赶上前沿电子时, 整个电子团簇被压缩成致密的相对论电子片. 因此, 只有在这个强周期内, 才能形成致密的相对论纳米电子片, 以同步辐射方式辐射出一个孤立的阿秒脉冲.

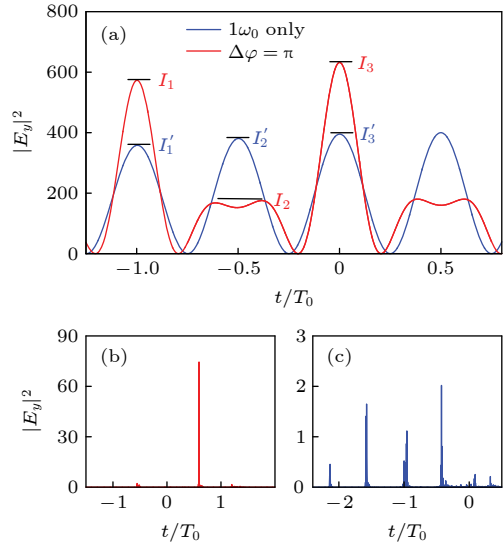


图 5 (a) 单色和双色驱动激光脉冲的波形; (b) 单色和 (c) 双色驱动激光脉冲两种情况下产生的阿秒脉冲对比^[69]

Fig. 5. (a) Temporal intensity of one color and two color laser pulses; (b), (c) generated attosecond pulses for two cases^[69].

2.3 基于灯塔机制的阿秒脉冲产生方案

孤立阿秒脉冲除了以上在时间上分离的方案, 还可以在空间上进行分离. 飞秒激光脉冲波前具有时空耦合特性, 也就是脉冲的空间分布将随时间变化, 其中比较具有代表性的时空耦合是波前旋转. 在啁啾脉冲放大技术中, 如果光栅不能保证严格平行, 产生的强激光脉冲就会发生脉冲前沿倾斜, 其物理机理如图 6 所示^[70]. 由于入射角和衍射角不相等, 脉冲中光线的光程随横向坐标的变化而变化, 脉冲前沿和波前不再重合 (如图 6(a) 所示), 因此脉冲中电场最大值所形成的直线相对波前是倾斜的 (如图 6(b) 所示). 这种带有脉冲前沿倾斜的激光脉冲聚焦以后具有空间啁啾特点 (如图 6(c) 所示). 对空间进行傅里叶变换以后, 波前方向随时间是旋转变化的 (如图 6(d) 所示). 如果给定了脉宽 τ 和发散角 θ , 那么波前旋转的最大速度为 $\theta/2\tau$. 可以做如下理解: 脉冲的光线大约扫过的最大角度为发散角 θ , 而所需的最短时间是激光的脉宽 τ . 因此发散角越大, 脉宽越短, 飞秒激光脉冲波前旋转的速度就越大.

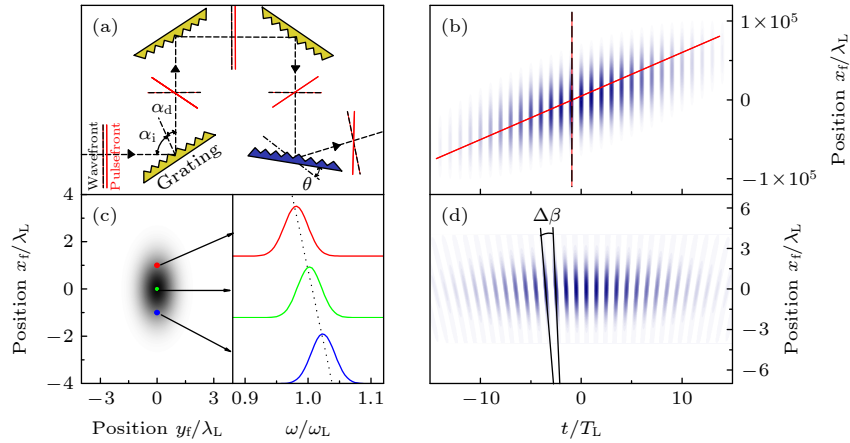


图 6 飞秒激光的脉冲前沿倾斜和波前旋转的物理机理示意图^[70]

Fig. 6. Pulse-front tilt and wave-front rotation in the chirped-pulse-amplification laser^[70].

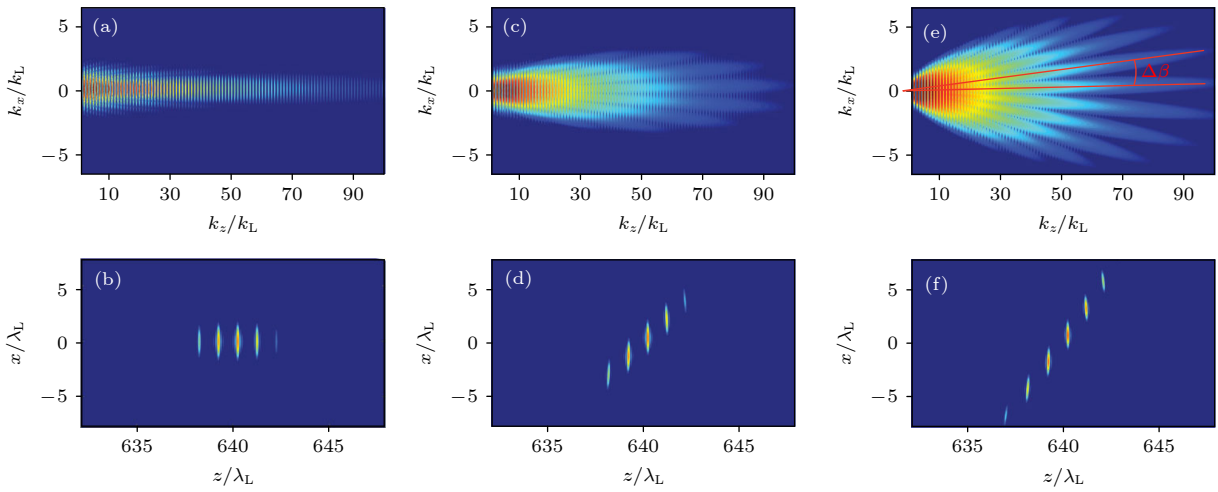


图 7 相对论振荡镜模型下, 不同波前旋转角速度对应的阿秒脉冲空间分离效果^[70]

Fig. 7. Results of the relativistic oscillating mirror model for the attosecond lighthouse effect with different rotation velocity^[70].

虽然这种波前旋转对强场物理来说是需极力避免的效应, 但是具有适度波前旋转的激光脉冲可以产生不同散射角的阿秒脉冲, 而且在每一个特定的角度上都只有一个孤立的阿秒脉冲, 这就是孤立阿秒脉冲产生的灯塔机制. 这种灯塔方案产生孤立阿秒脉冲的机制可以在相对论振荡镜机制中实现^[70-72]. 图 7 所示的研究结果表明, 波前旋转速度越大, 阿秒脉冲在空间不同的角度上分离得越好^[70]. 图 7 第一行表示旋转速度为 0, 这时阿秒脉冲在角度上没有分开; 第二行表示旋转角速度为最大值一半的情况, 阿秒脉冲在角度上开始分开; 第三行表示最大旋转角速度的情况, 阿秒脉冲在角度上完全分开了, 而且在激光脉冲入射方向上得到了强度最高的孤立阿秒脉冲, 显然这非常有利于实验的操作. 对基于阿秒脉冲泵浦和阿秒脉冲探测

的方案来说, 这是非常简单有效的孤立阿秒脉冲产生方案.

2.4 基于双靶的孤立阿秒脉冲产生方案

强激光与双靶作用的研究在相干同步辐射、相干汤姆逊散射、康普顿散射等过程中具有重要的意义^[73,74]. 最近, 徐新荣等^[15]提出了基于双靶的孤立的阿秒脉冲产生的电容器靶机制. 如图 8 所示, 当激光脉冲与第一层超薄靶作用时, 把电子几乎完全推出形成相对论飞镜, 这个电子片穿过第二层靶以后就发散消失. 这个过程类似于电容器的充电过程, 使第一层靶带正电. 当从第一层靶透射的激光脉冲与第二层靶作用时, 通过有质动力和库仑力的共同作用, 可以从第二层靶形成一个向反射方向加速的相对论电子片. 当来自于第二层靶的电子片到

达第一层靶时, 相当于完成了放电过程, 辐射出一个孤立的阿秒脉冲.

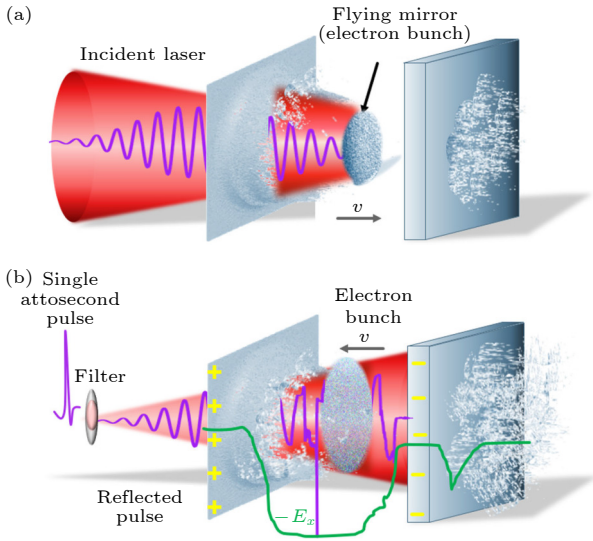


图 8 孤立阿秒脉冲产生的电容器靶方案 (a) 电容器靶的充电过程; (b) 电容器靶的放电过程^[15]

Fig. 8. Scheme of a single attosecond pulse generation by an intense laser irradiating a capacitor-nanofoil target: (a) Formation of relativistic flying electrons sheets from first target; (b) relativistic electron sheet from the second target for enhanced coherent synchrotron emission of attosecond pulse^[15].

3 孤立半周期阿秒脉冲产生的物理机理

半周期激光脉冲的电场矢量是单极性的, 可以对原子、固体中的电子进行非对称操纵或探测^[75–78]. 实验上已经得到了不同波段的半周期激光脉冲^[79–82]. 强激光与固体密度等离子体作用可以产生脉宽更短、强度更高的半周期阿秒脉冲. 本节将着重讨论强激光与固体密度等离子体作用产生半周期阿秒脉冲的几个重要的物理机理. 这几个机制的共同点是不需要滤波, 也不需要偏振门技术, 在透射方向可以直接得到半周期的阿秒脉冲, 避免了谐波能量在滤波过程中的损失.

3.1 基于双靶的半周期阿秒脉冲产生机制

少周期激光与双薄膜靶作用可以产生超强的半周期阿秒脉冲^[83], 其物理机理如图 9 所示. 当沿 z 方向偏振的强激光脉冲斜入射到第一层透明靶作用时, 由于激光的有质动力远大于电荷分离场的静电力, 可以把大部分电子推出靶外, 形成一个超薄

的相对论电子片 (图 9 中的绿色长方形表示从第一层靶推出的电子片). 当该相对论电子片和透射激光脉冲一起斜入射到第二个不透明靶上时, 激光脉冲被反射而相对论电子片继续穿透第二层靶. 在这个穿透过程中, 由于激光在第二层靶反射时产生了横向踢效应 (transverse kick), 所以相对论电子片获得了 y 方向的横向动量 $p_y = mctan\theta$, 其中 θ 是斜入射激光的入射角. 因此相对论电子片产生了一个横向电流 $J_y = -ev_y n_e$, 从而辐射出一个半周期的 p 偏振阿秒脉冲 (沿 y 方向偏振). 在电子片穿透第二层靶以后, 由于激光的振幅 a_z 为 0, 根据广义动量守恒, 电子的动量分量 p_z 也为 0. 可见第二层反射靶对转换电子的动量方向起到了至关重要的作用. 此后, 电子的横向动量方向不再改变, 因而辐射出一个半周期的阿秒脉冲.

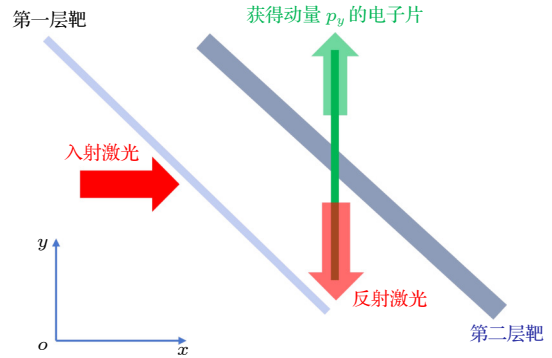


图 9 激光斜入射双靶产生阿秒脉冲方案示意图

Fig. 9. Scheme of attosecond pulse generation for the laser oblique irradiating double target.

3.2 长脉冲激光与三层靶作用产生半周期阿秒脉冲

3.1 节介绍的双靶机制辐射阿秒脉冲的过程本质上是相干同步辐射机制, 激光脉冲在第二层靶被反射时产生的瞬时横向反作用效应是该双靶机制的关键^[83], 该效应后来被实验所证实^[84]. 该实验和上述理论工作的区别在于实验中的电子片是由两个靶之间的稀薄等离子体产生的. 因为理论工作^[83]要求的脉宽为 3 个周期, 强度超过 10^{19} W/cm², 对比度超过 10^{10} 等激光脉冲条件超出了该实验室激光器的性能, 所以在实验中采用了三层靶方案, 即在两层固体靶之间充满稀薄等离子体^[84]. 实验中第一个靶的作用是对入射激光脉冲上升沿进行整形, 使其上升沿变得非常陡峭. 当具有陡峭上升沿的脉冲与

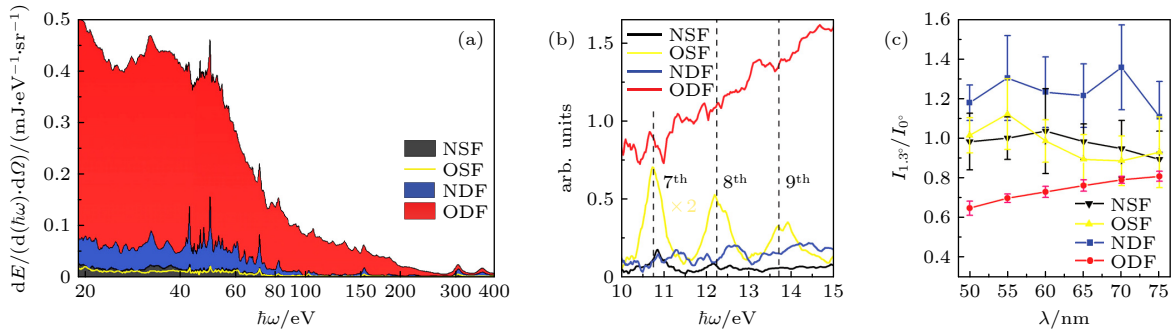


图 10 (a) 实验测得辐射谱, NSF 表示正入射单靶, OSF 表示斜入射单靶, NDF 表示正入射双靶, ODF 表示斜入射双靶; (b) 用厚度为 50 nm 的铝膜进行滤波的谱, 这里只给出了不同靶条件下相对振幅的大小; (c) 离轴与轴上的谐波强度之比, 用 50 nm 斜入射单靶的数据进行了归一化^[84]

Fig. 10. (a) Experimental spectra in the range of 18–400 eV. (b) Spectra are recorded behind a 50 nm Al filter without calibration. They give only relative amplitudes for different target geometry, but not the actual shape of the spectra. (c) Ratio of off-axis to on-axis intensity, normalized to the case of OSF at 50 nm^[84].

双靶之间的稀薄等离子体相互作用时, 产生了相对论电子片. 激光脉冲和这个相对论电子片到达第二层靶以后, 接下来发生的物理过程和理论研究的过程完全一样. 如图 10 所示, 实验比较了单靶、双靶、正入射、斜入射等情况下谐波辐射强度的区别, 结果证明斜入射双靶的谐波强度是最大的, 而正入射时谐波辐射效率非常低, 与理论研究结论一致^[84].

3.3 基于气体靶与固体靶组合的半周期阿秒脉冲

与激光斜入射双靶类似, 激光与气体靶与固体靶组合作用方案也能产生半周期阿秒脉冲. 如图 11 所示, 在两个特殊设计的气体靶室中间倾斜放置了一个平面薄膜靶^[85]. p 偏振的长脉冲激光 (沿 y 方向线偏振激光) 首先与气体靶作用, 激光脉冲前沿经过与稀薄等离子体相互作用后获得陡峭的上升沿, 使得入射的长周期激光脉冲演变为接近阶跃波形的脉冲. 该陡峭的上升沿在稀薄等离子体中可以产生一个超薄的相对论电子片. 该电子片的形成依赖于激光脉冲在第一个气体靶室内的演化和激光脉冲初始的高强度. 该相对论电子片继续向前运动, 当它穿过斜放的平面薄膜靶时, 辐射出一个半周期的阿秒脉冲. 在激光传播方向与薄膜靶的夹角为 45° 的情况下, 相对论电子片的横向动量将从 $P_y/m_e c \sim a$ 降低到 $P_y/m_e c \sim \tan\theta$. 电子的纵向动量有明显的增加. 与前述激光斜入射双靶不同的是^[83,84], 阿秒脉冲也是 p 偏振的. 该阿秒脉冲具有相位稳定、高度准直等品质, 还有非常大的横向尺度, 因此它的峰值功率可以达到 2.1 TW, 脉冲总能量为 0.6 mJ, 相当于入射激光脉冲总能量的 3.3×10^{-5} 倍. 薄膜靶右侧的气体靶室用来探测阿秒脉冲.

量为 0.6 mJ, 相当于入射激光脉冲总能量的 3.3×10^{-5} 倍. 薄膜靶右侧的气体靶室用来探测阿秒脉冲.

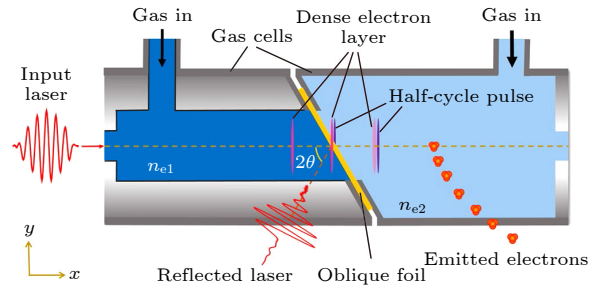


图 11 多周期激光入射气体-固体组合靶产生半周期阿秒脉冲机制^[85]

Fig. 11. Scheme of half-cycle attosecond pulse emission and detection for relativistic multi-cycle laser pulse irradiating gas-foil target^[85].

3.4 半周期阿秒脉冲的级联辐射机制

单周期激光与临界密度等离子体相互作用的规律与长脉冲激光的情况有所不同, 因为它只有一个周期, 所以一般只能产生两个相对论电子片. 第一个电子片产生的第一个阿秒脉冲作用在第二个电子片上辐射出第二个阿秒脉冲, 这就是半周期阿秒脉冲产生的级联辐射机制^[86]. 如图 12 所示, 当单周期激光正入射等离子体时, 在前半个周期电子被激光的有质动力推向等离子体内部, 形成电子的堆积 (如图 12(a) 所示), 然后又被电荷分离场拉回来形成了高密度的相对论电子片 (称为电子片 I). 相对论电子片 I 以同步辐射方式辐射出第一个阿秒脉冲 (如图 12(b) 所示). 当电子片 I 向反射方向运动到等离子体的左边界时, 电荷分离场将改变方

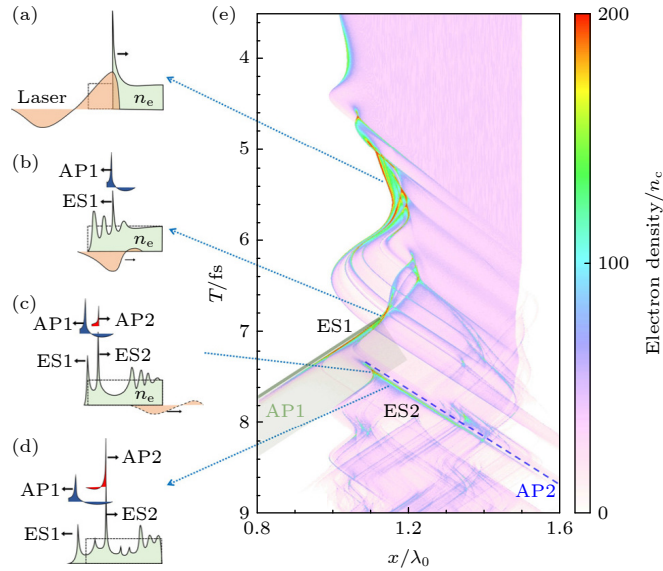


图 12 半周期阿秒脉冲的产生机制 (a)–(d) 电子片的形成过程及相应的阿秒脉冲辐射的级联过程; (e) 电子密度的时空演化图^[86]
 Fig. 12. Generation mechanism of a sub-10 as half-cycle pulse: (a)–(d) Formation of the electron sheets and the attosecond pulse generation step by step; (e) spatial-temporal evolution of the electron density^[86].

向, 这导致电子片 I 右侧那些较为弥散的电子改变方向, 向等离子体内部加速, 形成了第二个相对论电子片 (称为电子片 II)(如图 12(c) 所示). 在电子片 I 产生的阿秒脉冲的拖尾的作用下, 第二个电子片辐射出第二个阿秒脉冲 (如图 12(d) 所示). 因为第二个阿秒脉冲是在第一个阿秒脉冲的级联作用下产生的, 因此具有更强的高频成分, 使得第二个阿秒脉冲脉宽可以到 10 as 以下. 另外, 由于拖尾场的方向是恒定的而且时间极短, 因此电子片 II 辐射出一个半周期阿秒脉冲^[86].

电子片 I 和电子片 II 有时被分别称为主电子片和次级电子片. 次级电子片是向透射方向加速运动的, 它的存在是比较普遍的. 如果是多周期的强激光与等离子体相互作用, 如前所述会产生阿秒脉冲串. 阿秒脉冲串中的每个脉冲都包含有两个主要的频率成分: 高频成分的亚脉冲由主电子片产生, 低频成分的亚脉冲由次级电子片产生. 两个亚脉冲之间的时间间隔是 130 as^[87]. 因此如何分离两个电子片, 使得它们产生的脉冲在时间上能有足够的延迟, 是产生脉宽低于 10 as 的关键. 在前述的单周期驱动激光条件下做到了这一点, 使主电子片和次级电子片分别向反射方向和透射方向运动, 它们辐射的阿秒脉冲在空间和时间上也完全分开了^[86].

3.5 基于微结构靶的半周期阿秒脉冲

特殊的微结构靶也可以产生半周期阿秒脉冲.

微结构靶结构如图 13 所示. 第一层厚度为 2 nm, 密度为 $950n_c$; 第二层厚度为 250 nm, 密度为 $50n_c$; 第三层厚度为 30 nm, 密度为 $150n_c$, 其中 n_c 是等离子体的临界密度. 双色激光脉冲的归一化振幅分别为 $a_{01} = 40.0$ 和 $a_{02} = 44.4$. 相应的光强分别为 $3.42 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$ 及 $4.22 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$. 这些参数是通过粒子模拟得到的最佳值, 实际上这些参数在相当大的区间内, 该机制都是非常有效的^[88].

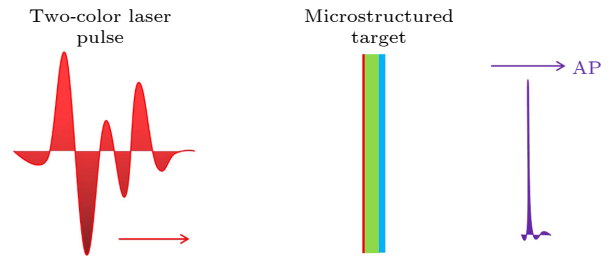


图 13 强激光与三层微结构靶作用产生阿秒脉冲的示意图^[88]
 Fig. 13. Schematic of an attosecond pulse (AP) generated by the interaction of intense laser pulse with a microstructured foil^[88].

Fig. 13. Schematic of an attosecond pulse (AP) generated by the interaction of intense laser pulse with a microstructured foil^[88].

当强激光脉冲垂直入射该微结构靶时, 主要产生了三个相对论电子片 (见图 14)^[88]. 电子片 A 来自第一层靶, 电子片 B 和 C 来自第二层靶. 虽然阿秒脉冲是由来自第二层的电子片 B 辐射的, 但是第一层靶的存在起到了至关重要的作用, 主要体现在以下几个方面: a) 高密度的第一层靶提供了非

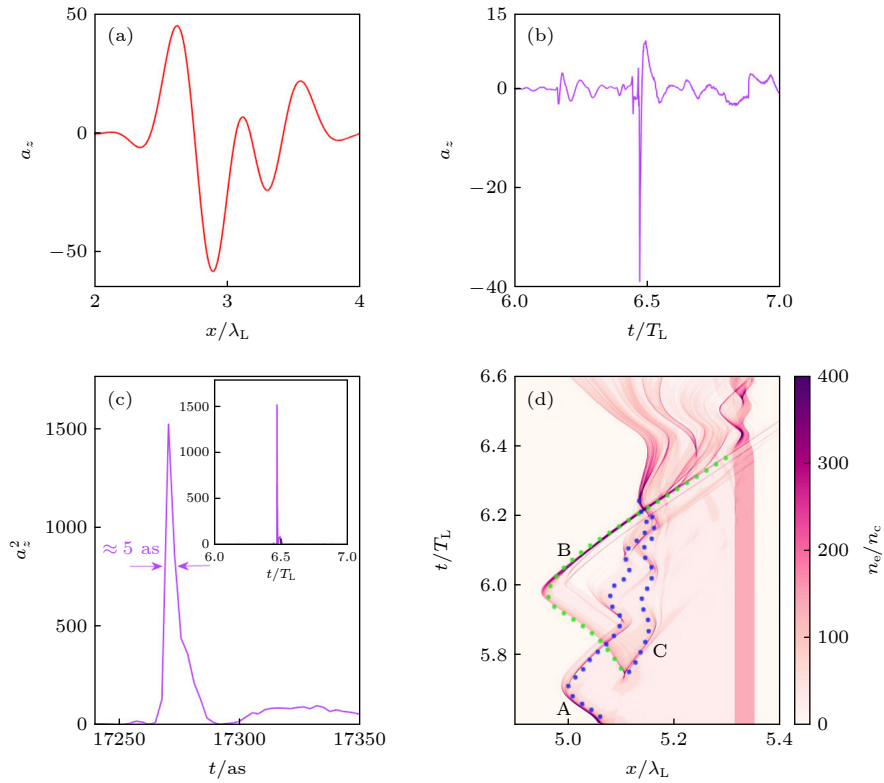


图 14 (a) 双色激光合成脉冲的波形; (b) 透射方向产生的半周期阿秒脉冲的电场波形; (c) 阿秒脉冲强度分布波形, 脉宽为 5 as; (d) 电子数密度的时空演化过程. 图中电子片 B 用绿色点线标出, 电子片 A 和 C 用蓝色点线标出^[88]

Fig. 14. (a) Spatial profile of normalized electric field of the driving two-color laser pulses; (b) normalized electric field of an attosecond pulse in transmission direction; (c) attosecond pulse has a FWHM of about 5 as; (d) spatiotemporal evolution of the normalized electron number density. The trajectory of electron sheet B is marked by a green dotted line and the trajectory of electron sheets A and C are represented by blue dotted lines^[88].

常强的库仑场, 避免了电子片 B 中部分电子逃逸, 保存了其大电量的特点, 从而可以辐射出强度高达 10^{21} W/cm² 的阿秒脉冲; b) 电子片 A 和 C 在和电子片 B 相遇以后向反射方向加速运动, 这就提供了电荷补偿效应, 使得电子片 B 可以被持续加速到超相对论速度, 因此电子片 B 的相干同步辐射谱更加平缓 ($\omega^{-8/7}$), 高频成分的占比更大; c) 由于高密度第一层靶的存在, 其产生的超强静电场把电子片 A 和 C 向反射方向加速, 保证了只有一个电子片对透射阿秒脉冲辐射有贡献, 因此可以得到一个孤立的半周期阿秒脉冲.

3.6 基于三色激光脉冲驱动的半周期阿秒脉冲

三色激光脉冲与薄膜固体靶作用可直接产生半周期阿秒脉冲^[16]. 三色激光脉冲的独特波形是辐射孤立阿秒脉冲的关键. 如图 15(b) 所示, 除了在三色激光脉冲的上升沿和下降沿中非常弱的周

期外, 还有一个比基频激光脉冲上升和下降更快的大振幅振荡周期. 当图 15(b) 中蓝色点线标记的三色激光脉冲的最强振荡周期与靶体相互作用时, 经过两次大振幅的相对论锯齿形振荡后, 这些电子在洛伦兹力和库仑力的共同作用下自组织形成致密纳米电子片 A. 但是在透射方向产生阿秒脉冲的并不是纳米电子片 A. 从图 15(a) 所示的纳米电子片 A 的结构来看, 在 A 的右侧有一些分布相对弥散的电子, 由于这部分电子纵向动量较小, 在洛伦兹力的作用下改变原有的运动轨迹, 朝靶后方向运动并会聚成为另一个纳米电子片 B. 而电子片 A 恰好相反, 在激光有质动力的作用下, 又开始向反射方向运动, 并在空间上发散直至消失. 因此, 最终只有一个电子片 B 对透射方向的阿秒脉冲辐射有贡献, 可以辐射出一个孤立的半周期阿秒脉冲. 如图 15(c) 所示, 该机制产生了一个超高振幅的半周期阿秒脉冲, 其光强可以达到 8.2×10^{22} W/cm², 脉宽可以低至 3.5 as.

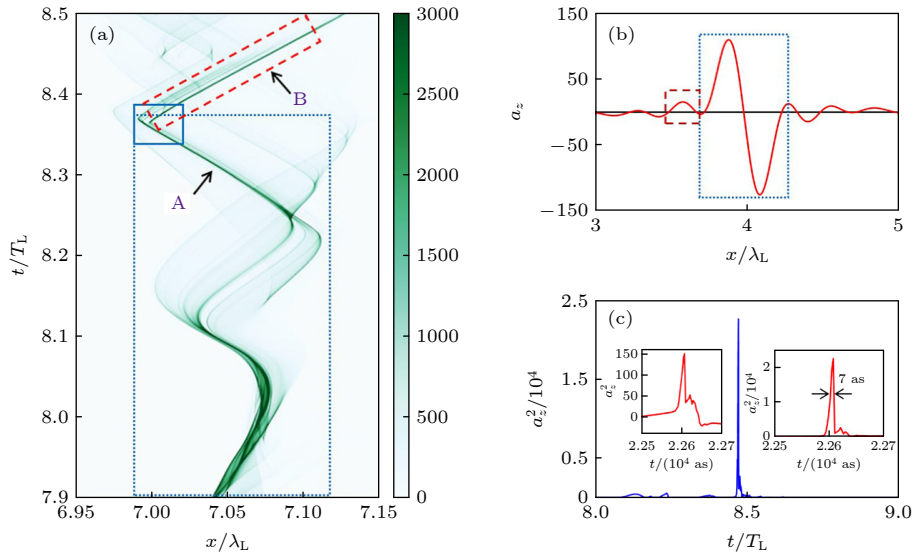


图 15 (a) 电子密度的时空演化图; (b) 三色激光合成脉冲的波形; (c) 产生的半周期阿秒脉冲, 脉宽为 7 as^[16]

Fig. 15. (a) Spatiotemporal evolution of the normalized electron number density; (b) waveform of the normalized electric field from the three-color laser pulses before it interacts with the foil; (c) generated half-cycle attosecond pulse in the transmission direction. The left inset shows a unipolar profile and the right inset shows a close-up of the attosecond pulse having a FWHM of about 7 as^[16].

3.7 半周期阿秒脉冲的实验可行性、标定测量、及应用前景

下面简要地讨论以上半周期阿秒脉冲方案的可行性. 从以上几种半周期阿秒脉冲的产生机制来看, 少周期激光是非常有利于半周期阿秒脉冲辐射的^[16,83,86,88]. 如果是长脉冲激光, 则需要对脉冲前沿进行整形, 以获得足够陡峭的上升沿^[84,85]. 得益于光学参量啁啾脉冲放大技术以及等离子体技术的发展, 激光的对比度大于 10^{10} . 另一方面, 薄膜压缩技术也有可能产生脉宽为 2 fs 的近单周期激光^[89]. 随着激光技术的进一步发展, 有望能满足以上几个机制中对激光技术的要求. 另一个规律是, 在透射方向获得了半周期阿秒脉冲. 在反射方向一般得不到半周期阿秒脉冲, 这是因为激光对它的横向扰动方向不是恒定的, 而且在向反射方向加速运动时对反射驱动激光也难以避免产生多普勒效应. 所以上面讨论的几个机制大多青睐于少周期激光辐照薄膜靶. 类金刚石靶 (diamondlike carbon, DLC) 的相关技术可以实现 3 nm 及以上厚度的薄膜靶制备, 结合离子刻蚀方法, 基本能够实现以上几种机制所需靶的密度和厚度^[90,91].

利用阿秒脉冲进行超快过程的时间分辨测量的前提是阿秒脉冲本身的脉宽必须首先确定下来. 如果系统的响应时间比脉冲的宽度小, 泵浦探测

的自相关技术可以用来确定脉冲的宽度. 光学自相关技术一般基于双光子过程, 而双光子相互作用截面随光子能量的提高而降低. 因此自相关测量技术一般适用于 10 eV 以下的光子阿秒脉冲宽度的测量^[92].

从上面讨论的几个半周期阿秒脉冲辐射机制来看, 脉宽可以达到 10 as 以下, 脉冲中心频率对应的光子能量一般都大于 10 eV. 因此光学自相关技术不适合用来标定这种超短脉冲. 这里简要介绍一种全光学的测量技术, 该技术类似于条纹相机中电子条纹的概念, 可以用来直接表征这种超短的阿秒脉冲^[42,93]. 这种全光学的测量技术的优点是系统可以响应阿秒脉冲的快速振荡的电场, 而不仅仅是响应脉冲的包络. 其原理是通过几乎瞬时的光发射过程, 把被测量的阿秒脉冲转换成自由电子, 这些自由电子可以是光电子或者俄歇电子. 在光电子发射的瞬间, 电子从光脉冲获得了动量. 考虑一个线偏振的光脉冲, 电子获得的动量平行于光矢量, 进而改变了电子的能量. 在不同的角度观测, 电子的能量分布是不一样的. 如果是在光矢量方向观测, 那么光脉冲的光矢量会使得电子能量增加或降低, 电子能量随时间的改变与光脉冲的光矢量随时间的变化是实时同步的. 在光脉冲的半个周期中, 电子能量从最小值扫到最大值. 这种时间到能量的映射是可以达到阿秒时间分辨率的^[94].

半周期电磁脉冲可以用来研究一维半导体量子线和超晶格、双量子点、半导体和石墨烯量子环中的自旋动力学^[76], 它可以对低维电子系统中电荷及其自旋动力学进行相干控制. 半周期阿秒脉冲可以在半导体的异质结处激发反转对称性破坏从而导致 Rashba 自旋-轨道相互作用^[95]. 半周期光脉冲还可以控制辐射特性, 而辐射光谱编码了电子系统及其动力学的某些信息, 通过辐射光谱可以探测小量子系统中超快过程的动力学. 半周期脉冲驱动量子系统 (如纳米结构) 发出的光具有新奇的性质, 比如可以在超快的时间尺度上控制辐射光的圆偏振度^[96].

4 相对论超密纳米电子片的形成机制

在阿秒脉冲的相干同步辐射机制中, 相对论纳米电子片的产生是至关重要的. 向反射方向加速运动的相对论电子片形成机制已经非常清楚了. 这里重点讨论向透射方向加速运动的电子片的形成机制和物理模型. 在研究三色激光脉冲与薄膜固体靶作用产生半周期阿秒脉冲的工作中, 本文作者建立了透射方向加速运动的相对论电子片形成的物理模型^[16]. 其他工作中透射相对论电子片的形成机制也可以借鉴该模型进行理解和讨论. 从数值模拟结果可以看出, 相对论振荡是向透射方向加速的电子片形成的主要机制. 激光等离子体动力学可由下面的动量方程来描述:

$$\frac{d(\gamma v_x)}{dt} = -2\pi(a_x - v_z B_y), \quad (1)$$

电场强度 a_x 、磁场强度 B_y 、速度 (v_x , v_z) 分别用 $m_e \omega_L c/e$, $m_e \omega_L/e$ 和 c 来进行归一化, 而时间 t 通过

λ_L/c 进行归一化. 其中 m_e 是电子质量, ω_L 是激光的圆频率, c 是真空中光速, λ_L 是激光的波长. 静电场可以写为

$$a_x(x(t), t) = 2\pi \int_{-\infty}^{x(t)} (Z_i n_{i0} - n_e(x', t)) dx', \quad (2)$$

式中 Z_i 代表的是离子的电荷数. 对未扰动离子数密度 n_{i0} 和电子数密度 n_e 都通过 n_c 进行了归一化. 其中空间坐标 x 通过 λ_L 进行归一化, 时间坐标 t 通过 T_L 进行归一化. 假设离子在少周期驱动激光脉冲的作用下保持静止, 那么静电场对时间的导数为

$$\frac{da_x(x(t), t)}{dt} = 2\pi \left[\frac{dx}{dt} (Z_i n_{i0} - n_e(x, t)) + \int_{-\infty}^{x(t)} \frac{\partial (Z_i n_{i0} - n_e(x', t))}{\partial t} dx' \right]. \quad (3)$$

在纳米电子片的形成过程中, 电子可以被视为流体, 满足流体的连续性方程

$$v_x n_e(x, t) + \int_{-\infty}^x \frac{\partial n_e(x', t)}{\partial t} dx' = 0. \quad (4)$$

经过化简, 得到了电子的相空间关系为

$$2\pi n_{e0} x^2(t) + \sqrt{1 + p_x(t)^2 + p_z^2} = \sqrt{1 + p_{x0}^2 + p_z^2}, \quad (5)$$

相空间关系给出了坐标 $x(t)$ 和动量 $p_x(t)$ 之间的函数关系. 对不同的初始条件 p_{x0} 和 p_z , 像空间和电子轨迹都依赖于初始条件. 假设横向激光磁场和电子的横向动量在纳米束形成过程中保持不变, 则可以得到电子片 B 在任意时刻的空间坐标为

$$x(t) = \int_0^t \frac{p_x(t')}{\sqrt{1 + p_x(t')^2 + p_z^2}} dt'. \quad (6)$$

方程 (6) 的数值解可以清楚地给出电子片的形成过程 (如图 16(a) 所示), 其中 4 个电子的初始条件为:

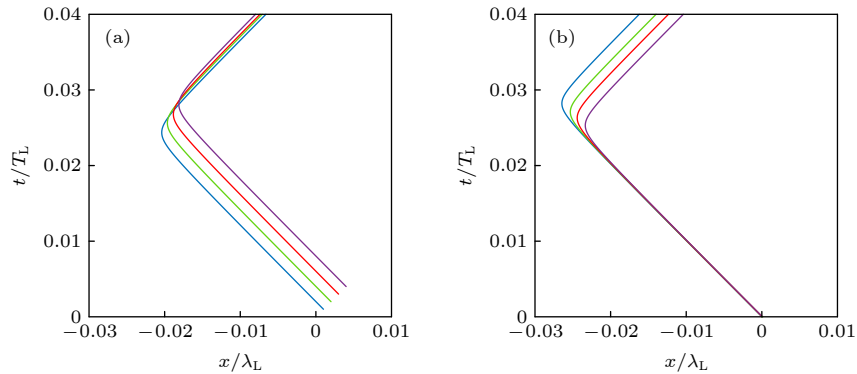


图 16 从理论模型得到的 $x-t$ 平面上的电子轨迹 (a) 电子片会聚的理论模型结果; (b) 电子片发散的理論模型结果^[16]

Fig. 16. Electron trajectory in the $x-t$ plane from the analytical model: (a) Nanobunching model for explaining the convergence mechanism of electrons; (b) model for explaining the divergence mechanism of electron nanobunch^[16].

$p_z = -2.5$, $p_x = -7.5, -7.6, -7.7, -7.8$, $dp_x/dt = 110, 109, 108, 107$. 图 16(b) 可用于解释电子纳米束的分散过程. 其中 4 个电子的初始条件为: $p_z = -4$, $p_x = -10, -9.5, -9, -8.5$, $dp_x/dt = 100, 102, 104, 106$. 这些初始条件来自于粒子模拟的结果 [16]. 造成电子片分散的主要原因是激光场对电子片 A 中不同空间位置电子的洛伦兹力和电子的纵向速度有很大的不同. 可以看出该理论模型与纳米电子束形成过程和分散过程的模拟结果符合较好.

5 结 论

强激光与固体密度等离子体相互作用产生的阿秒脉冲宽度可以短到 10 as 以下, 峰值功率可以到百太瓦量级, 光强可以达到 10^{22} W/cm² 甚至更高. 因此强激光和固体密度等离子体作用产生的阿秒脉冲可以满足泵浦探测技术的要求, 甚至有望产生光子能量达到兆电子伏量级的阿秒脉冲, 从而开启原子核内部阿秒物理过程的研究. 因此, 本文重点论述了强激光与固体靶作用产生孤立阿秒脉冲的几个重要机制, 包括偏振门机制、双色激光脉冲机制、灯塔机制、双靶机制等. 对每一种机制的物理原理进行了较为详细的讨论.

半周期阿秒脉冲的脉宽更短, 可以提高泵浦探测的时间分辨率. 另一方面, 半周期阿秒脉冲可以在半导体的异质结处激发反转对称性破坏, 还可以对低维电子系统中电荷及其自旋动力学进行相干控制. 因此本文又专门讨论了强激光与固体密度等离子体作用产生半周期阿秒脉冲的几个重要物理机制, 主要包括双薄膜靶机制、三层靶机制、气体靶与固体靶组合机制、级联辐射机制、特殊的微结构靶机制、三色激光脉冲驱动机制等. 通过高次谐波滤波合成阿秒脉冲时需要进行低频截断, 而高次谐波的能量主要集中在低频部分, 因此滤波会损失谐波的大部分能量. 这几个机制的共同点是不需要滤波即可在透射方向直接产生半周期的阿秒脉冲.

阿秒科学是未来几年最为重要的研究方向之一, 阿秒脉冲产生的新机制、新物理是阿秒科学不断向前发展的基础. 强激光与固体密度等离子体相互作用产生的阿秒脉冲是一种超高强度、超短脉宽 (阿秒乃至飞秒) 的极紫外或 X 射线相干光源, 对它的研究具有十分重要的意义.

参考文献

- [1] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [2] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [3] Heissler P, Tzallas P, Mikhailova J M, Khrennikov K, Waldecker L, Krausz F, Karsch S, Charalambidis D, Tsakiris G D 2010 *New J. Phys.* **14** 043025
- [4] Wang Y, Liu Y, Wu C Y 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 234205 (in Chinese) [汪洋, 刘煜, 吴成印 2022 *物理学报* **71** 234205]
- [5] Xu Y D, Jiang W Y, Tong J H, Han L L, Zuo Z T, Xu L M, Gong X C, Wu J 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 233301 (in Chinese) [徐一丹, 姜雯昱, 童继红, 韩露露, 左子潭, 许理明, 宫晓春, 吴健 2022 *物理学报* **71** 233301]
- [6] Tu Q, Chen Y L, Liu K, Wang F, Zhang X F, Yang Y, Tang F M, Liao Q 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 113202 (in Chinese) [屠倩, 陈友龙, 刘凯, 王凤, 张晓凡, 杨溢, 唐富明, 廖青 2021 *物理学报* **70** 113202]
- [7] Tzallas P, Charalambidis D, Papadogiannis N A, Witte K, Tsakiris G D 2003 *Nature* **426** 267
- [8] Nabekawa Y, Shimizu T, Okino T, Furusawa K, Hasegawa H, Yamanouchi K, Midorikawa K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 153904
- [9] Takahashi E J, Lan P, Mücke O D, Nabekawa Y, Midorikawa K 2013 *Nat. Commun.* **4** 2691
- [10] Gauthier D, Guizar-Sicairos M, Ge X, Boutu W, Carré B, Fienup J R, Merdji H 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 093901
- [11] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [12] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [13] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nat. Photonics* **4** 875
- [14] Hu S, Chen Z Y 2022 *Phys. Plasmas* **29** 013102
- [15] Xu X, Zhang Y, Zhang H, Lu H, Zhou W, Zhou C, Dromey B, Zhu S, Zepf M, He X, Qiao B 2020 *Optica* **7** 355
- [16] Pang R, Wang Y, Yan X, Eliasson B 2022 *Phys. Rev. Appl.* **18** 024024
- [17] Gordienko S, Pukhov A, Shorokhov O, Baeva T 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 115002
- [18] Chen Z Y, Pukhov A 2016 *Nat. Commun.* **7** 12515
- [19] Teubner U, Gibbon P 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 445
- [20] Thauray C, Quéré F, Geindre J P, Levy A, Ceccotti T, Monot P, Bougeard M, Réau F, d' Oliveira P, Audebert P, Marjoribanks R, Martin Ph 2007 *Nat. Phys.* **3** 424
- [21] Gao J, Ye D, Liu J, Kang W 2022 *Matter Radiat. Extremes* **7** 044403
- [22] Cai H P, Gao J, Li B Y, Liu F, Chen L M, Yuan X H, Chen M, Sheng Z M, Zhang J 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 214205 (in Chinese) [蔡怀鹏, 高健, 李博原, 刘峰, 陈黎明, 远晓辉, 陈民, 盛政明, 张杰 2018 *物理学报* **67** 214205]
- [23] Xu X R, Zhong C L, Zhang Y, Liu F, Wang S Y, Tan F, Zhang Y X, Zhou W M, Qiao B 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 084206 (in Chinese) [徐新荣, 仲丛林, 张钰, 刘峰, 王少义, 谭放, 张玉雪, 周维民, 乔宾 2021 *物理学报* **70** 084206]
- [24] Liang Z, Shen B, Zhang X, Zhang L 2020 *Matter Radiat. Extremes* **5** 054401
- [25] Zhu X L, Chen M, Yu T P, Weng S M, He F, Sheng Z M 2019 *Matter Radiat. Extremes* **4** 014401
- [26] Brunel F 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 52
- [27] Quéré F, Thauray C, Monot P, Dobosz S, Martin Ph, Geindre J P, Audebert P 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 125004

- [28] Bulanov S V, Naumova N M, Pegoraro F 1994 *Phys. Plasmas* **1** 745
- [29] Gibbon P 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 50
- [30] Lichters R, Meyer-ter-Vehn J, Pukhov A 1996 *Phys. Plasmas* **3** 3425
- [31] Pukhov A 2006 *Nat. Phys.* **2** 439
- [32] Dollar F, Cummings P, Chvykov V, Willingale L, Vargas M, Yanovsky V, Zwick C, Maksimchuk A, Thomas A G R, Krushelnick K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 175002
- [33] Kahaly S, Monchocé S, Vincenti H, Dzelzainis T, Dromey B, Zepf M, Martin Ph, Quéré F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 175001
- [34] Heissler P, Hörlein R, Mikhailova J M, Waldecker L, Tzallas P, Buck A, Schmid K, Sears C M S, Krausz F, Veisz L, Zepf M, Tsakiris G D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 235003
- [35] Dromey B, Zepf M, Gopal A, Lancaster K, Wei M S, Krushelnick K, Tatarakis M, Vakakis N, Moustazis S, Kodama R, Tampo M, Stoeckl C, Clarke R, Habara H, Neely D, Karsch S, Norreys P 2006 *Nat. Phys.* **2** 456
- [36] Dromey B, Kar S, Bellei C, Carroll D C, Clarke R J, Green J S, Kneip S, Markey K, Nagel S R, Simpson P T, Willingale L, McKenna P, Neely D, Najmudin Z, Krushelnick K, Norreys P A, Zepf M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 085001
- [37] An der Brügge D, Pukhov A 2010 *Phys. Plasmas* **17** 033110
- [38] Mikhailova J M, Fedorov M V, Karpowicz N, Gibbon P, Platonenko V T, Zheltikov A M, Krausz F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 245005
- [39] Dromey B, Rykovanov S, Yeung M, Hörlein R, Jung D, Gautier D C, Dzelzainis T, Kiefer D, Palaniyppan S, Shah R, Schreiber J, Ruhl H, Fernandez J C, Lewis C L S, Zepf M, Hegelich B M 2012 *Nat. Phys.* **8** 804
- [40] Jiang Y, Chen Z Y, Liu Z, Cao L, Zheng C, Xie R, Chao Y, He X 2021 *Opt. Lett.* **46** 1285
- [41] Wu Y Y, Dong Q L, Wang Z H, Liu P, Wang C Z, Zhang Y H, Sheng Z M, Zhang J 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 095201
- [42] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [43] Platonenko V T, Strelkov V V 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 435
- [44] Tscherbakoff O, Mevel E, Descamps D, Plumridge J, Constant E 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043804
- [45] Tzallas P, Skantzakis E, Kalpouzou C, Benis E P, Tsakiris G D, Charalambidis D 2007 *Nat. Phys.* **3** 846
- [46] Charambidis D, Tzallas P, Benis E P, Maravellias G, Nikolopoulos L A A, Peralta C A, Tsakiris G D 2008 *New J. Phys.* **10** 025018
- [47] Baeva T, Gordienko S, Pukhov A 2006 *Phys. Rev. E* **74** 065401
- [48] Yeung M, Dromey B, Cousens S, Dzelzainis T, Kiefer D, Schreiber J, Bin J H, Ma W, Kreuzer C, Meyer-ter-Vehn J, Streeter M J V, Foster P S, Rykovanov S, Zepf M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 123902
- [49] Heissler P, Hörlein R, Stafe M, Mikhailova J M, Nomura Y, Herrmann D, Tautz R, Rykovanov S G, Földes I B, Varjú K, Tavella F, Marcinkevicius A, Krausz F, Veisz L, Tsakiris G D 2010 *Appl. Phys. B* **101** 511
- [50] Easter J H, Nees J A, Hou B X, Mordovanakis A, Mourou G, Thomas A G R, Krushelnick K 2013 *New J. Phys.* **15** 025035
- [51] Rykovanov S G, Geissler M, Meyer-ter-Vehn J, Tsakiris G D 2008 *New J. Phys.* **10** 025025
- [52] Yeung M, Bierbach J, Eckner E, Rykovanov S, Kuschel S, Sövert A, Förster M, Rödel C, Paulus G G, Cousens S, Coughlan M, Dromey B, Zepf M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 193903
- [53] Li B Y, Liu F, Chen M, Wu F Y, Wang J W, Lu L, Li J L, Ge X L, Yuan X H, Yan W C, Chen L M, Sheng Z M, Zhang J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 244801
- [54] Chen Z Y, Li X Y, Li B Y, Chen M, Liu F 2018 *Opt. Express* **26** 4572
- [55] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, Neumark D M, Leone S R 2006 *Opt. Lett.* **31** 975
- [56] Yoshitomi D, Kobayashi Y, Takada H, Kakehata M, Torizuka K 2005 *Opt. Lett.* **30** 1408
- [57] Zhang G T, Liu X S 2009 *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* **42** 125603
- [58] Yuan K J, Bandrauk A D J 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023003
- [59] Li P C, Liu I L, Chu S I 2011 *Opt. Express* **19** 23857
- [60] Qin Y F, Guo F M, Li S Y, Yang Y J, Chen G 2014 *Chin. Phys. B* **23** 093205
- [61] Han L, Miao S L, Li P C 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 233204 (in Chinese) [汉琳, 苗淑莉, 李鹏程 2022 物理学报 **71** 233204]
- [62] Du J X, Wang G L, Li X Y, Zhou X X 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 233207 (in Chinese) [杜进旭, 王国利, 李小勇, 周效信 2022 物理学报 **71** 233207]
- [63] Chen G 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 054204 (in Chinese) [陈高 2022 物理学报 **71** 054204]
- [64] Chen G, Yang Y J, Guo F M 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 073203 (in Chinese) [陈高, 杨玉军, 郭福明 2013 物理学报 **62** 073203]
- [65] Chang Z J 2007 *Phys. Rev. A* **76** 051403
- [66] Tarasevitch A, Kohn R, von der Linde D 2009 *J. Phys. B* **42** 134006
- [67] Tarasevitch A, von der Linde D 2009 *Eur. Phys. J. Special Topics* **175** 35
- [68] Edwards M R, Platonenko V T, Mikhailova J M 2014 *Opt. Lett.* **39** 6823
- [69] Zhang Y X, Rykovanov S, Shi M, Zhong C L, He X T, Qiao B, Zepf M 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 114802
- [70] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [71] Wheeler J A, Borot A, Monchocé S, Vincenti H, Ricci A, Malvache A, Lopez-Martens R, Quéré F 2012 *Nat. Photonics* **6** 829
- [72] Hammond T J, Brown G G, Kim K T, Villeneuve D M, Corkum P B 2016 *Nat. Photonics* **10** 171
- [73] Xu X R, Qiao B, Chang H X, Zhang Y X, Zhang H, Zhong C L, Zhou C T, Zhu S P, He X T 2018 *Plasma Phys. Control. Fusion* **60** 045005
- [74] Wu H C, Meyer-ter-Vehn J, Hegelich B M, Fernandez J C 2011 *Phys. Rev. Spec. Top. Accel Beams* **14** 070702
- [75] Arkhipov M V, Arkhipov R M, Pakhomov A V, Babushkin I V, Demircan A, Morgner U, Rosanov N N 2017 *Opt. Lett.* **42** 2189
- [76] Moskalenko A S, Zhu Z G, Berakdar J 2017 *Phys. Rep.* **672** 1
- [77] Thiele I, Siminos E, Fülöp T 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 104803
- [78] Pakhomov A V, Arkhipov R M, Babushkin I V, Arkhipov M V, Tolmachev Y A, Rosanov N N 2017 *Phys. Rev. A* **95** 013804
- [79] Gao Y, Drake T, Chen Z, DeCamp M F 2008 *Opt. Lett.* **33** 2776
- [80] Greene B I, Federici J F, Dykaar D R, Jones R R, Bucksbaum P H 1991 *Appl. Phys. Lett.* **59** 893
- [81] Liang H, Krogen P, Wang Z, Park H, Kroh T, Zawilski K, Schunemann P, Moses J, DiMauro L F, Körtner F X, Hong K -H 2017 *Nat. Commun.* **8** 141
- [82] Hassan M Th, Luu T T, Moulet A, Raskazovskaya O, Zhokhov P, Garg M, Karpowicz N, Zheltikov A M, Pervak V,

- Krausz F, Goulielmakis E 2016 *Nature* **530** 6
- [83] Wu H C, Meyer-ter-Vehn J 2012 *Nat. Photonics* **6** 304
- [84] Ma W J, Bin J H, Wang H Y, Yeung M, Kreuzer C, Streeter M, Foster P S, Cousens S, Kiefer D, Dromey B, Yan X Q, Meyer-ter-Vehn J, Zepf M, Schreiber J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 235002
- [85] Xu J, Shen B, Zhang X, Shi Y, Ji L, Zhang L, Xu T, Wang W, Zhao X, Xu Z 2018 *Sci. Rep.* **8** 2669
- [86] Shou Y, Hu R, Gong Z, Yu J, Chen J, Mourou G, Yan X, Ma W 2021 *New J. Phys.* **23** 053003
- [87] Cousens S, Reville B, Dromey B, Zepf M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 083901
- [88] Wei S, Wang Y, Yan X, Eliasson B 2022 *Phys. Rev. E* **106** 025203
- [89] Mourou G, Mironov S, Khazanov E, Sergeev A 2014 *Eur. Phys. J. Special Topics* **223** 1181
- [90] Henig A, Steinke S, Schntirer M, Sokollik T, Hörlein R, Kiefer D, Jung D, Schreiber J, Hegelich B M, Yan X Q, Meyer-ter-Vehn J, Tajima T, Nickles P V, Sandner W, Habs D 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 245003
- [91] Cantono G, Permogorov A, Ferri J, Smetanina E, Dmitriev A, Persson A, Fülöp T, Wahlström C G 2021 *Sci. Rep.* **11** 5006
- [92] Kobayashi Y, Sekikawa T, Nabekawa Y, Watanabe S 1998 *Opt. Lett.* **23** 64
- [93] Itatani J, Quere F, Yudin G L, Ivanov M Y, Krausz F, Corkum P B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173903
- [94] Reider G A 2004 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** R37
- [95] Frustaglia D, Hentschel M, Richter K 2004 *Phys. Rev. B* **69** 155327
- [96] Moskalenko A S, Berakdar J 2008 *Phys. Rev. A* **78** 051804(R)

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Isolated attosecond pulse generation from the interaction of intense laser pulse with solid density plasma*Wang Yun-Liang^{1)†} Yan Xue-Qing^{2)3)4)‡}1) (*School of Mathematics and Physics, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)2) (*State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, Peking University, Beijing 100871, China*)3) (*Beijing Laser Acceleration Innovation Center, Beijing 101407, China*)4) (*Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

(Received 26 November 2022; revised manuscript received 4 February 2023)

Abstract

This article gives an overview on recent progress in the generation of isolated attosecond pulse and isolated half-cycle attosecond pulse. As an isolated attosecond pulse is preferred in the pump-probe experiments for the dynamics of electrons in atom, molecule, or solid, we focus on the isolated attosecond pulses generation from the intense laser pulses interaction with solid density plasma, which have higher intensity and narrower pulse width than that generated in the interaction of laser pulse with gas target. We have firstly discussed the physical mechanism of isolated attosecond pulse generation, such as polarization gating, two-color laser pulses, attosecond light houses, and capacitor target mechanism. In the polarization gating mechanism, we have discussed the physical mechanism that the higher-order harmonic efficiency decreases with the increase of ellipticity. Both the coherent synchrotron radiation mechanism and the relativistic oscillation mechanism can control the intensity of high-order harmonic generation by controlling ellipticity of the incident laser pulse. We also discussed other mechanism to enhance the isolated attosecond pulse bursts in detail. Secondly, we focus on the isolated half-cycle attosecond pulses, which can also be generated from the intense laser pulses interaction with solid density plasma by double foil target mechanism, gas-foil target mechanism, cascaded generation mechanism, microstructured target mechanism, and three-color laser pulse mechanism. The half-cycle attosecond pulses can be useful for probing ultrafast electron dynamics in matter via asymmetric manipulation. Accordingly we discussed the physical mechanism, experimental feasibility, calibration measurement, and application prospect of half-cycle attosecond pulse in this article. The above mechanism can directly generate ultra-intense isolated attosecond pulses in the transmission direction without requiring extra filters and gating techniques. The dense electron sheet is crucial for the generation of intense attosecond pulses in different mechanisms, such as coherent wake emission (CWE), relativistic oscillating mirror (ROM) and coherent synchrotron emission (CSE). In this article, all the mechanism for half-cycle attosecond pulses generation can ensure only one electron sheet contributing to the transmitted radiation. We discuss the theoretical model of nanobunching of the electron sheet, which shows that the relativistic oscillation is crucial for the formation of electron sheet.

Keywords: intense laser pulses, solid density plasma, half-cycle attosecond pulses, isolated attosecond pulse**PACS:** 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.38.–r**DOI:** 10.7498/aps.72.20222262

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974043, 11921006) and the National Key Scientific Instrument and Equipment Development Project of China (Grant No. 2019YFF01014400).

† Corresponding author. E-mail: ylwang@ustb.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: x.yan@pku.edu.cn

强激光与固体密度等离子体作用产生孤立阿秒脉冲的研究进展

王云良 颜学庆

Isolated attosecond pulse generation from the interaction of intense laser pulse with solid density plasma

Wang Yun-Liang Yan Xue-Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 054207 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222262

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222262>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

优化双色近红外激光及其二次谐波场驱动原子产生孤立阿秒脉冲

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields

物理学报. 2022, 71(23): 233207 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375>

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

纳秒激光等离子体相互作用过程中激光强度对微波辐射影响的研究

Effect of laser intensity on microwave radiation generated in nanosecond laser-plasma interactions

物理学报. 2019, 68(12): 125201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190501>

专题: 阿秒物理 • 封面文章

Yb:CaYAlO₄ 再生放大器*

王阁阳¹⁾ 白川¹⁾ 麦海静¹⁾ 郑立¹⁾ 田轩¹⁾ 于洋²⁾ 田文龙^{1)†}
徐晓东⁴⁾ 魏志义³⁾ 朱江峰^{1)‡}

1) (西安电子科技大学光电工程学院, 西安 710071)

2) (西安电子科技大学前沿交叉研究院, 西安 710071)

3) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

4) (江苏师范大学物理与电子工程学院, 徐州 221116)

(2022年11月9日收到; 2022年12月22日收到修改稿)

阿秒科学是驱动超强超快激光往高平均功率和短脉冲宽度方向快速发展的动力之一. 本文针对高重复频率阿秒光源的实际需求, 开展了基于国产 Yb:CaYAlO₄ 晶体的再生放大理论和实验研究. 在理论研究中, 根据 Yb:CaYAlO₄ 晶体的热透镜计算结果, 设计了热稳定性良好的模式可调再生腔; 并对晶体 π 和 σ 偏振的放大输出能量和光谱进行计算. 在此基础上, 开展了 Yb:CaYAlO₄ 晶体不同偏振性质的再生放大实验研究. 在晶体 π 偏振的实验中, 获得了平均功率 16.1 W、单脉冲能量 1.61 mJ、光谱中心波长 1030 nm、光谱半高全宽 16 nm 的放大输出, 压缩后的激光脉冲宽度为 149 fs, 压缩效率为 92.1%, 峰值功率大于 9.5 GW. 在 σ 偏振获得了平均功率 28.7 W、单脉冲能量 2.87 mJ、光谱中心波长 1037 nm、光谱半高全宽 11 nm 的放大输出, 压缩后的激光脉冲宽度为 178 fs, 压缩效率为 91.5%, 峰值功率大于 14.2 GW, 光束质量因子 $M^2 < 1.2$. 以上研究结果实现了目前 Yb:CaYAlO₄ 晶体最高平均功率和最大单脉冲能量的输出. 针对高重复频率阿秒光源、太赫兹和光参量放大领域的应用, 后续计划增加两级行波放大实现平均功率 200 W、脉冲能量 20 mJ、脉冲宽度小于 200 fs 的激光输出.

关键词: 掺镱激光晶体, 再生放大器, 高功率飞秒激光, 阿秒科学

PACS: 42.55.-f, 42.55.Xi, 42.60.Da, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.72.20222141

1 引言

超高峰值功率、超短脉冲宽度的飞秒激光, 为阿秒科学^[1]、等离子体物理^[2]、凝聚态物理^[3]和精密光谱学^[4]等研究提供了极端的强场条件和超快的时间分辨, 是基础科学研究领域重要的工具. 此外, 高峰值功率和短脉冲宽度的特性使得飞秒激光与物质发生相互作用时, 作用区域精确且作用时间

极短. 因此, 在医学诊断与治疗^[5]、微纳制造^[6]和先进材料加工^[7]等领域也具有广阔的应用前景.

目前, 能够产生高峰值功率飞秒激光的增益介质主要包括钛宝石晶体和掺镱激光晶体. 其中, 钛宝石晶体发射光谱宽、增益截面大, 是产生周期量级高峰值功率飞秒激光的首选. 典型的钛宝石再生放大器提供重复频率 1—10 kHz、平均功率 5—15 W、脉冲宽度小于 30 fs 的飞秒激光输出, 是目前阿秒科学和非线性光学研究中的重要工具. 但在光电子

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFB4601102)、国家自然科学基金 (批准号: 11774277, 61975071)、陕西省自然科学基金研究计划 (批准号: 2019JCW-03) 和西安市科技创新计划 (批准号: 202005YK01) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wltian@xidian.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: jfzhu@xidian.edu.cn

能谱研究中,需要更高重复频率的驱动激光来克服空间电荷效应,实现能量分辨率和测量信噪比的提升^[8].此外,在光发射电子显微镜^[9]、相干衍射成像^[10]和瞬态吸收光谱^[11]等研究中,高重复频率的驱动激光还可以有效缩短数据的采集时间.然而,在同样的峰值功率下,飞秒激光放大器重复频率的提高意味着平均输出功率的增大.但钛宝石激光器受限于较低的量子效率和昂贵的泵浦源成本,平均功率的提升进入了瓶颈期.

相较而言,掺镱增益介质的吸收峰与铟砷化镓激光二极管(laser diode, LD)的发射波长吻合,且量子效率超过90%,可支持高功率激光运转^[12].此外,由于三价镱离子(Yb^{3+})只有两个分立能级 ${}^2\text{F}_{5/2}$ 和 ${}^2\text{F}_{7/2}$,有效避免了激发态吸收、上转换、交叉弛豫和浓度猝灭等能量损失,有助于提高发射激光效率^[13].基于以上优点,高平均功率、大脉冲能量的掺镱全固态飞秒激光研究如火如荼^[14].但受限于掺镱增益介质的发射带宽,以掺镱钇铝石榴石($\text{Yb}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, $\text{Yb}:\text{YAG}$)薄片^[15]和板条^[16]为代表的高功率飞秒激光器输出的激光脉冲宽度往往在亚皮秒量级,难以直接满足科学研究对超快时间分辨的要求.而 $\text{Yb}:\text{CaYAlO}_4$ ($\text{Yb}:\text{CYA}$)等掺镱铝酸盐晶体,由于基质晶格的无序性,使得发射光谱非均匀展宽(半高全宽77 nm),具备输出超短脉冲的潜力^[17].

2016年,白俄罗斯国立技术大学^[18]首次报道了基于 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体的再生放大工作,研究了晶体不同轴向的放大性质,种子激光偏振方向平行晶体 π 轴时获得了脉冲宽度为190 fs、平均功率为2.3 W、中心波长为1031.8 nm、光谱宽度为12.5 nm的激光放大输出;之后通过改变晶体放置方向,在种子激光偏振方向平行晶体 σ 轴时获得了脉冲宽度为310 fs、平均功率为4.2 W、中心波长为1037.4 nm、光谱宽度为7.7 nm的放大输出.为进一步验证 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体在短脉冲放大方面的潜力,2018年白俄罗斯国立技术大学研究者^[19]将光谱宽度12.5 nm、脉冲宽度100 fs的激光脉冲耦合进10 m长的单模光纤,获得了光谱宽度60 nm、脉冲宽度7.5 ps的种子激光.在200 kHz重复频率下,实现了平均功率4 W、光谱宽度19.4 nm的激光输出,压缩后的脉冲宽度为120 fs、平均功率为3 W.2022年,索菲亚大学研究者^[20]报道了基于 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体产生毫焦耳量级飞秒脉冲的工作,在

1 kHz重复频率下,实现了中心波长1040 nm、光谱半高宽16.6 nm、脉冲宽度为135 fs、单脉冲能量1 mJ的放大输出.上述研究工作证明 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体在放大过程中不仅可以提供宽带增益,还支持短脉冲宽度输出.但目前报道的放大结果受限于平均功率,仍难以满足阿秒科学和非线性光学等领域的研究需求.

为了获得兼顾高平均功率、大脉冲能量和窄脉冲宽度的飞秒激光,本文提出了如图1所示的发展路线.基于国产自研 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体的再生放大器和两级行波放大器,获得平均功率大于200 W、最大脉冲能量大于20 mJ、脉冲宽度小于200 fs、重复频率覆盖1 kHz—1 MHz的飞秒激光放大输出.相比脉冲宽度在亚皮秒量级的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 薄片激光器和结构复杂的低温制冷激光器,该方案优点在于利用了 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体不同偏振的增益特性,在获得高功率飞秒激光的同时,保持较短的脉冲宽度,紧凑可靠的结构可满足后端应用对激光器平均功率、脉冲能量、脉冲宽度和重复频率的不同需求.该方案的难点在于再生放大过程中的增益控制以及高功率连续泵浦下的激光晶体热管理技术研究.增益控制技术主要包括利用激光晶体的偏振发射特性去抑制放大过程中的增益窄化效应,是实现短脉冲输出的关键;激光晶体热管理主要是结合微通道流体技术研究有效的散热结构,降低激光晶体泵浦端面的温度,避免热退偏和热梯度对放大激光脉冲质量和光束质量的影响.

本文主要介绍其中再生放大器部分的理论分析和实验研究结果.理论分析部分,首先对影响激光放大过程模式匹配的热透镜焦距进行求解,在120 W连续泵浦下,计算得到的 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体 π 和 σ 偏振方向的热透镜焦距分别为307.9 mm和309.4 mm,并据此对再生谐振腔进行热稳定性设计.其次对再生放大动力学过程进行仿真,计算可得 $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体在重复频率10 kHz、泵浦功率120 W下, π 偏振和 σ 偏振输出的单脉冲能量分别为2.03 mJ和2.91 mJ,对应的放大光谱宽度分别为14 nm和13 nm.在实验研究部分,重复频率为10 kHz时, $\text{Yb}:\text{CYA}$ 晶体在 π 偏振状态下获得了平均功率16.1 W、单脉冲能量1.61 mJ、光谱宽度16 nm的输出,压缩后的激光脉冲宽度为149 fs,压缩效率为92.1%,峰值功率大于9.5 GW;在 σ 偏振状态下获得了平均功率28.7 W、单脉冲能量

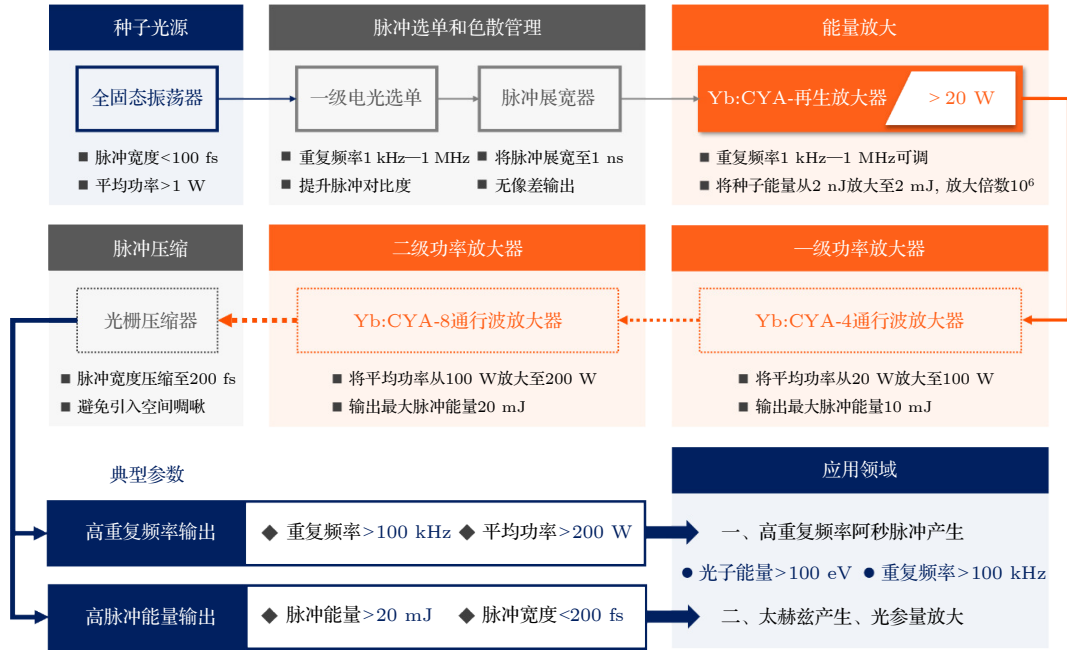


图 1 Yb:CfA 全固态放大器的技术路线

Fig. 1. Schematic illustration of the all-solid-state Yb:CfA amplifier.

2.87 mJ、光谱宽度 11 nm 的高功率输出, 压缩后的激光脉冲宽度为 178 fs, 压缩效率为 91.5%, 峰值功率大于 14.2 GW, 光束质量因子 $M^2 < 1.2$. 实验结果获得了目前 Yb:CfA 晶体中最高平均功率和最大单脉冲能量的激光输出, 与理论仿真基本符合.

2 理论仿真

2.1 再生放大过程中的热透镜效应

激光放大过程中, 增益介质处种子激光与泵浦激光的模式匹配决定了输出激光的效率. 而激光晶体处的热透镜效应是影响再生腔模式匹配的关键因素. 尤其在高功率连续泵浦的全固态放大器中, 热透镜对再生腔模式匹配的影响尤为严重, 导致此类放大器的光光效率普遍在 20% 以下. 在此情况下, 需要增加更大的泵浦功率以获得额定的输出, 此举会加重激光晶体处的热负荷, 带来光束质量恶化和偏振对比度降低等问题, 无法保证放大输出的激光质量.

采用有限元分析法, 对 Yb:CfA 晶体泵浦端面的温度分布和形变量进行计算. Yb:CfA 晶体的模型参数 [17,21] 在表 1 列出. 在 120 W 的泵浦功率下, Yb:CfA 晶体在泵浦端面沿 π 和 σ 轴的温度分布如图 2(a) 所示, 泵浦中心的最高温度分别为 124.44 $^{\circ}\text{C}$ 和 123.29 $^{\circ}\text{C}$. 此时, 根据光程差拟合得

到沿晶体 π 和 σ 轴的热透镜焦距如图 2(b) 所示, 分别为 307.9 mm 和 309.4 mm. 后续实验以此作为再生腔热稳定性和模式匹配设计的参考.

再生腔设计需要考虑光学元件的损伤阈值、透射元件处的非线性积累、增益介质处的泵浦强度和热透镜等因素. 其中, 增益介质处的热透镜效应是影响再生腔激光模式的主要原因. 因此, 设计了如图 3(a) 所示的激光模式可调的再生腔型, 较短的腔长使再生腔具有良好的热稳定性. 如图 3(b) 所示, 激光晶体处的热透镜焦距在 100—500 mm 范围内, 对再生腔激光模式影响较小. Yb:CfA 晶体在 120 W 泵浦功率下, π 轴和 σ 轴的热透镜焦距分别 307.9 mm 和 309.4 mm, 可以算出此时的激光模式半径分别为 172.4 μm 和 172.6 μm . 此外, 通过调节腔内透镜位置使再生腔失调灵敏度降低并处于稳腔边沿, 此时的再生腔衍射损耗增大, 腔内多横模起振困难, 更有利于获得高平均功率、高光束质量的单横模激光输出.

2.2 再生放大动力学过程仿真

连续激光泵浦下的全固态激光放大器, 其晶体储能的建立、消耗、恢复关系相比脉冲激光泵浦更为复杂. 掺镱增益介质的上能级寿命普遍在 ms 量级. 因此, 重复频率大于 1 kHz 的激光放大中, 种子脉冲的放大周期会小于激光晶体的上能级寿命. 一些

表 1 Yb:CYA 晶体的热性质参数
Table 1. Parameters of thermal performance for Yb:CYA crystal.

晶体 轴向	热导率/ (W·m ⁻¹ ·K ⁻¹)	折射率 <i>n</i>	密度/ (g·cm ⁻³)	热光系数/ (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	热膨胀系数/ (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	比热容/ (J·g ⁻¹ ·K ⁻¹) (301 K)
π	3.2	1.886	4.748	-7.8	8.99	0.593
σ	3.6	1.909		-8.7	8.97	

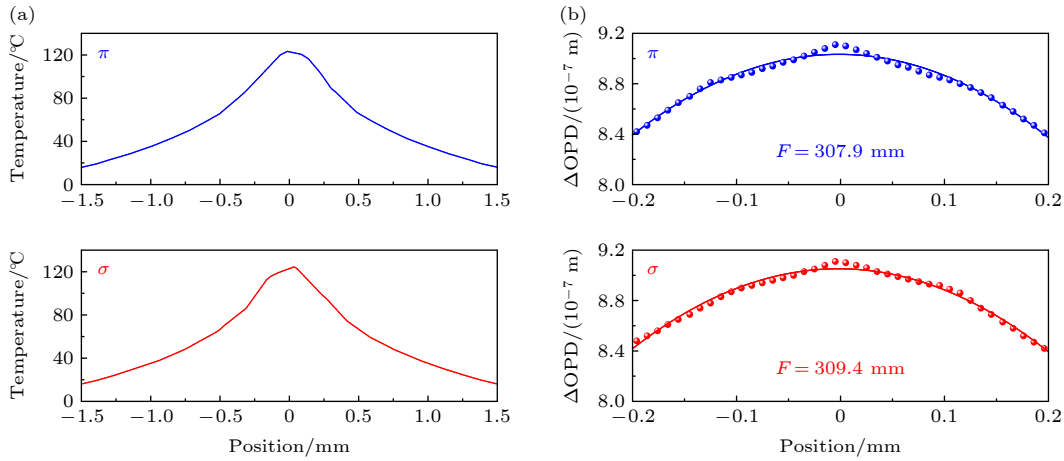


图 2 Yb:CYA 晶体泵浦端面沿 π 轴和 σ 轴的温度分布和屈光度变化 (a) 温度分布; (b) 屈光度变化

Fig. 2. Simulated temperature and dioptricity distributions along π and σ axes of the Yb:CYA crystal: (a) Temperature distribution; (b) dioptricity distribution.

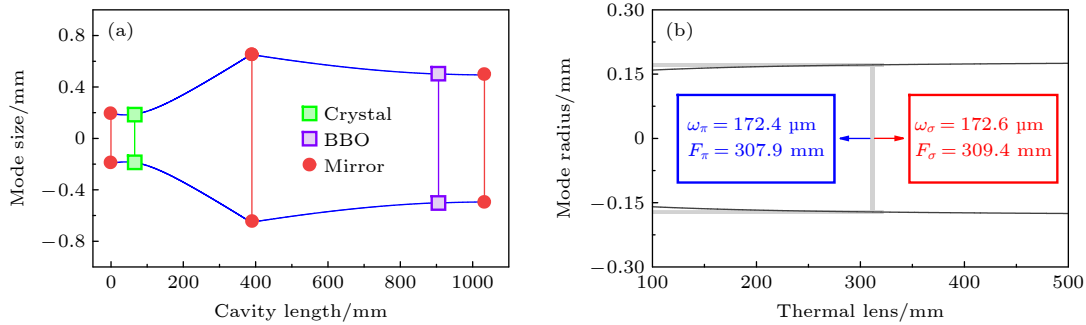


图 3 Yb:CYA 再生腔的激光模式计算 (a) 本征模式分布; (b) 热透镜对增益介质处激光模式的影响

Fig. 3. Calculated resonant cavity mode of the Yb:CYA regenerative amplifier: (a) Laser mode distribution; (b) laser mode at the crystal affected by the thermal lens.

重复频率下会发生晶体增益恢复不及时的情况, 从而引发相邻放大周期脉冲能量紊乱的问题 [22]. 为了实现稳定的能量输出, 基于改进型 F-N 方程 [23], 仿真了在 10 kHz 重复频率下, Yb:CYA 晶体不同偏振的放大输出能量和光谱变化. Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振在不同增益圈数下的脉冲能量输出仿真如图 4(a) 所示, 种子激光在 π 偏振方向增益 40 圈后获得 2.03 mJ 的饱和输出; 在 σ 偏振方向增益 56 圈后获得 2.91 mJ 的饱和输出. 在图 4(b) 中, 分别对 Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振饱和输出下的放大光谱进行仿真, π 偏振方向的放大光谱中心

为 1030 nm, 光谱半高宽 14 nm; σ 偏振方向的放大光谱中心为 1034 nm, 光谱半高宽为 13 nm.

3 实验结果和分析

基于再生谐振腔设计以及 Yb:CYA 晶体的放大数值模拟, 搭建了如图 5 所示的再生放大光路开展实验研究. 采用中心波长 1034 nm、重复频率 75.3 MHz、脉冲宽度 105 fs 的 Yb:KGW 振荡器作为种子光源, 可提供的最大种子能量为 80 nJ. 种子激光首先通过由法拉第旋光器和 1/2 波片组成

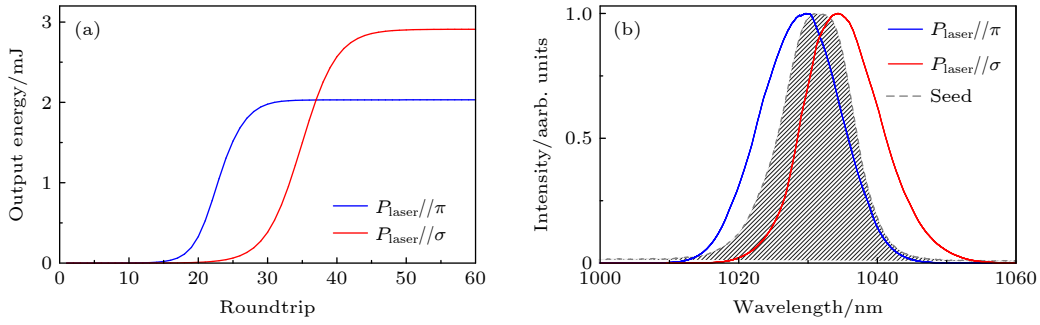


图 4 Yb:CYA 晶体在 π 和 σ 偏振方向下的放大输出仿真 (a) 脉冲能量; (b) 放大光谱

Fig. 4. The output characteristics and simulation results along π and σ axes of Yb:CYA crystal: (a) Pulse energy; (b) amplified spectrum.

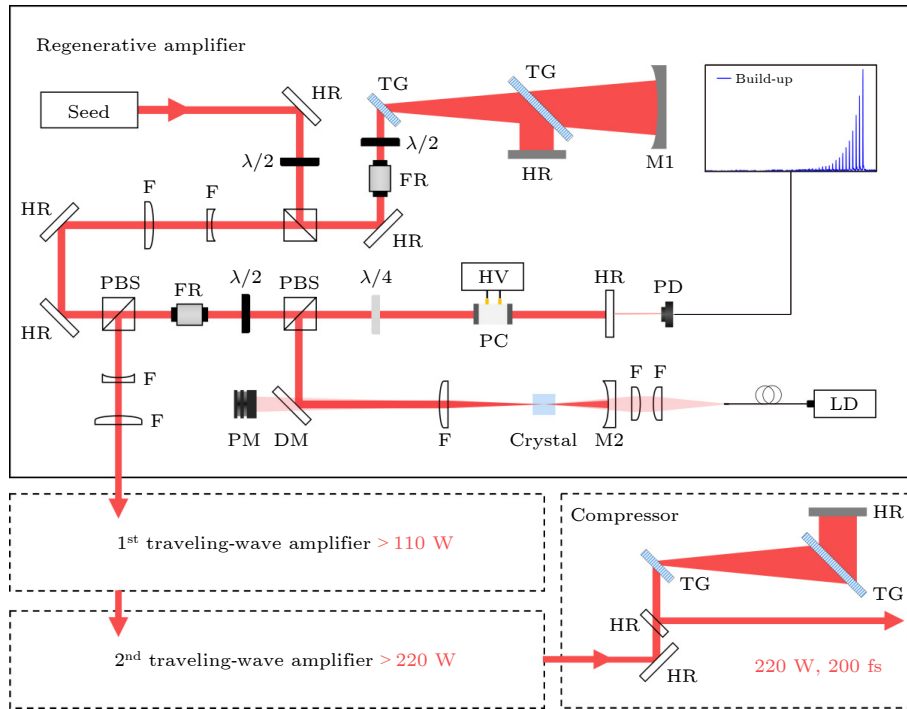


图 5 Yb:CYA 再生放大器实验装置 (Seed 为 Yb:KGW 振荡器, HR 为平面高反镜片, $\lambda/2$ 为 1/2 波片, PBS 为偏振分光棱镜, FR 为法拉第旋光器, TG 为透射光栅, M1 为平凹反射镜, F 为激光透镜, $\lambda/4$ 为 1/4 波片, HV 为高压驱动, PC 为普克尔盒, Crystal 为激光晶体, M2 为激光双色镜, LD 为 981 nm 半导体激光器, DM 为激光双色镜, PM 为功率计, PD 为光电探测器)

Fig. 5. Experimental set-up of the Yb:CYA regenerative amplifier. (Seed, Yb:KGW oscillator; HR, dielectric flat mirror; $\lambda/2$, half-wave plate; PBS, polarizing beam splitter; FR, faraday rotator; TG, transmission grating; M1, concave laser mirror; F, lens; $\lambda/4$, quarter wave plate; HV, pockels cell driver; PC, pockels cell; Crystal, Yb:CYA crystal; M2, dichroic mirror; LD, 981 nm laser diode; DM, dichroic mirror; PM, power meter; PD, photodiode).

的一级隔离装置, 避免光学元件回光干扰种子光源的锁模状态. 之后种子激光进入同心展宽器进行时域脉冲展宽. 展宽器采用的透射光栅刻线为 1600 mm^{-1} , 当两个光栅的间距为 160 mm 时, 提供 -9.04 ps^2 的二阶群延迟色散和 0.0794 ps^3 的三阶色散, 理论上能够将种子脉冲展宽至 321.3 ps. 利用高速示波器 (罗德施瓦茨 RTP164, 带宽为 16 GHz, 采样率为 $4 \times 10^{10} \text{ sample/s}$) 实际测量的展宽脉冲宽度 328.5 ps. 再生腔的总腔长 1.037 m,

种子脉冲往返再生腔一圈的时间为 6.92 ns, 普克尔盒加载高压的上升/下降沿时间为 5 ns, 种子脉冲的间隔为 13.3 ns, 因此满足控制单个脉冲在再生腔进行增益的时序条件. 再生腔中 Yb:CYA 晶体处的激光模式半径为 $182.9 \mu\text{m}$, 通过测量进入再生腔前的展宽激光光斑大小并加入像传递系统, 使展宽激光在 Yb:CYA 激光晶体处的光斑与泵浦激光和再生腔激光模式三者实现空间匹配, 以实现高效率的放大输出. 再生腔中的电光晶体为 40 mm

长的偏硼酸钡 (β -BaB₂O₄, BBO)晶体, BBO 处的激光模式半径为 505.3 μm . 为了评估放大过程中积累的非线性相位对脉冲的不利影响, 在再生腔输出能量 3 mJ 时, 计算得 Yb:CYA晶体和 BBO 晶体处的 B 积分分别为 1.11 和 0.135.

3.1 Yb:CYA 晶体在 π 偏振下的放大实验

Yb:CYA 晶体的 π 轴与种子激光的偏振方向平行时, 将再生放大器的重复频率设置为 10 kHz. 通过观察放大脉冲的稳定性, 对注入再生腔的种子能量进行优化. 在注入种子能量为 1.5 nJ 时, 放大脉冲强度稳定、无脉冲能量分叉情况. 放大输出功率曲线如图 6(a) 所示, Yb:CYA 晶体 π 轴放大的斜效率为 23.4%, 泵浦吸收斜率为 75.6%, 未被晶体吸收的泵浦功率由图 5 中的功率计实时测量. 在 LD 最大泵浦功率 120 W 情况下, 吸收泵浦功率为 88.1 W, 吸收率为 72.9%, 放大输出功率为 16.1 W, 对应的单脉冲能量大于 1.6 mJ, 吸收泵浦下的光光转换效率为 18.2%. 此时, 放大输出光谱如图 6(b) 所示, 中心波长为 1030 nm, 光谱半高宽为 16 nm. 如图 7 所示, 放大光谱对应的傅里

叶变换极限 (Fourier transform limited, FTL) 为 100 fs, 压缩后的激光脉冲宽度为 149 fs, 压缩效率为 92.1%, 对应的峰值功率大于 9.5 GW. 输出能量为 1.6 mJ 时, 普克尔盒的加压时间为 250 ns, 增益圈数为 36 圈. 而在放大仿真中, 增益 40 圈获得的饱和输出能量为 2.03 mJ, 光谱中心位于 1029.7 nm, 光谱半高宽为 14 nm. 总体来看, 实验结果和仿真结果较为吻合, 说明文中所论述的放大模型比较准确地反映了 Yb:CYA 晶体 π 偏振的放大性质.

3.2 Yb:CYA 晶体在 σ 偏振下的放大实验

通过旋转 Yb:CYA 晶体, 使其 σ 轴与种子激光的偏振方向平行. 在重复频率 10 kHz、注入种子能量 2 nJ 情况下, Yb:CYA 晶体 σ 偏振的放大功率曲线如图 8(a) 所示, 放大斜效率为 38.3%, 泵浦吸收斜率为 82.6%. 在 LD 最大功率 120 W 泵浦下, Yb:CYA 晶体吸收的泵浦功率为 99.81 W, 泵浦吸收率为 83.18%, 放大输出功率为 28.7 W, 对应吸收泵浦下的光转换效率为 28.8%. 此时, 放大输出光谱如图 8(b) 所示, 中心波长为 1037 nm, 光

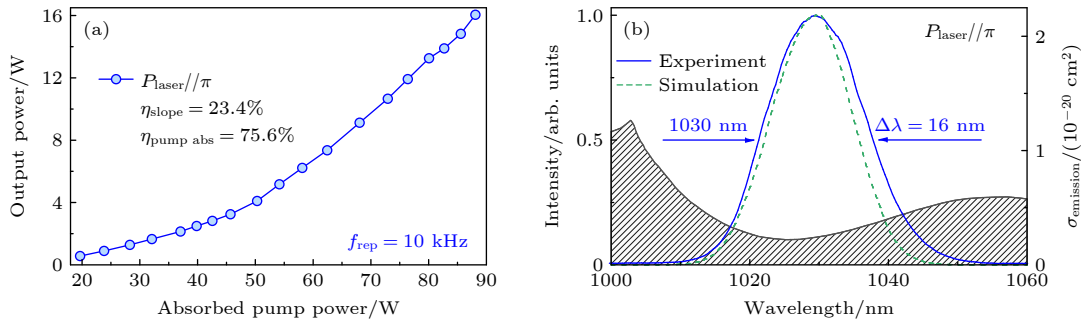


图 6 Yb:CYA 晶体在 π 偏振方向下的放大输出 (a) 功率曲线; (b) 放大光谱

Fig. 6. The amplified output results along π -axis of Yb:CYA crystal: (a) Measured power performance of the regenerative amplifier; (b) optical spectrum of amplified pulse.

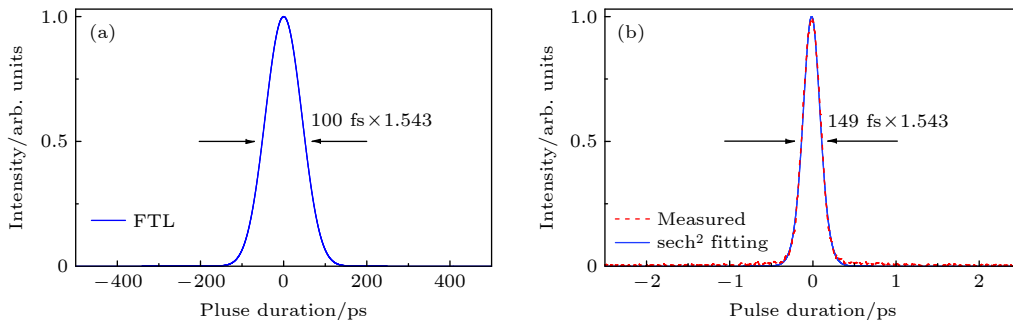


图 7 (a) 傅里叶变换极限脉冲宽度; (b) 压缩脉冲的自相关曲线

Fig. 7. (a) Fourier transform limited pulse duration; (b) intensity autocorrelation trace of amplified pulse.

谱半高宽为 11 nm. 由图 9 可看出, 放大光谱支持的傅里叶极限脉冲宽度和压缩脉冲宽度分别为 120 fs 和 178 fs, 压缩效率为 91.5%, 对应的峰值功率大于 14.2 GW. 有效的热管理使 Yb:CYA 放大器在高功率输出下, 保持了良好的光束质量. 在最大输出功率下 x 轴和 y 轴的光束质量因子 M^2 分别为 1.09 和 1.17, 如图 10(a) 所示, 近场光斑圆度为 0.95. 同时, 使用高速示波器对放大脉冲建立过程和输出脉冲时域序列进行监测. 放大脉冲建立过程如图 10(b) 所示, 普克尔盒的加压时间为 347 ns,

种子增益圈数为 50 圈, 实验中通过调节再生腔的损耗有效抑制了放大过程中的自发辐射. 输出脉冲的时域状态如图 11 所示, 为了保证时域信号的准确性, 测试期间对普克尔盒高压振铃信号进行屏蔽. 在 500 ps/div 的尺度下, 单发测量主脉冲与其 1 ns 之前噪声信号的峰值强度比值大于 1500:1; 主脉冲与其 1 ns 之后噪声信号的峰值强度比值大于 210:1. 在 50 μ s/div 的尺度下, 测得相邻激光脉冲的重复频率为 10.005 kHz, 脉冲间强度保持一致, 长时间监测无能量分叉和紊乱情况.

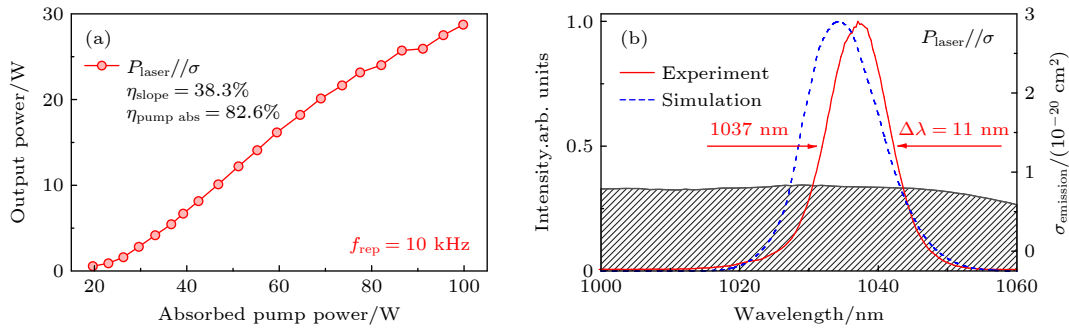


图 8 Yb:CYA 晶体在 σ 偏振方向下的放大输出 (a) 功率曲线; (b) 放大光谱

Fig. 8. The amplified output results along σ -axis of Yb:CYA crystal: (a) Measured power performance of the regenerative amplifier; (b) optical spectrum of amplified pulse.

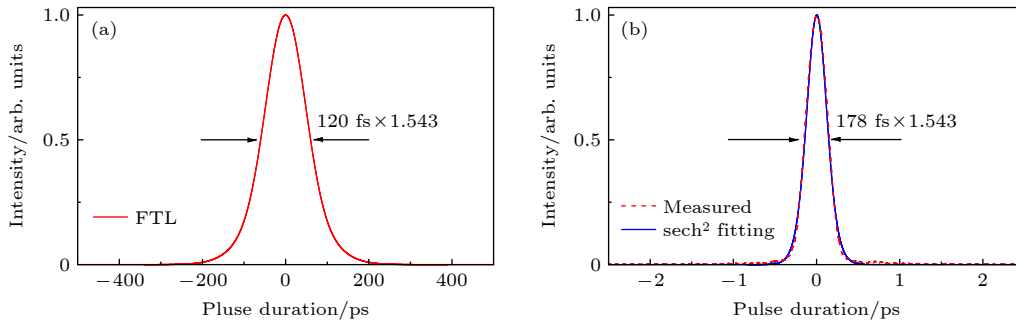


图 9 (a) 傅里叶极限脉冲宽度; (b) 压缩脉冲的自相关曲线

Fig. 9. (a) The Fourier-limit pulse duration; (b) intensity autocorrelation trace of amplified pulse.

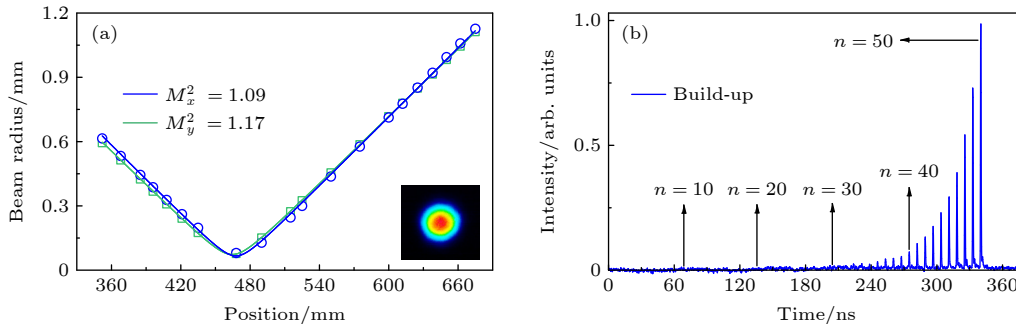


图 10 (a) 光束质量和光斑形状; (b) 放大脉冲建立过程

Fig. 10. (a) The output beam quality and profile; (b) the build-up of pulse energy.



图 11 高速示波器测量的脉冲轨迹 (a) 500 ps/div; (b) 50 μs/div

Fig. 11. Sampling oscilloscope traces of laser pulse in the time scale of (a) 500 ps/div and (b) 50 μs/div.

表 2 Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振放大参数比较

Table 2. Comparison of amplification indicators for π and σ axes of Yb:CYA crystal.

偏振	类型	平均功率 P/W	重复频率 f/kHz	脉冲能量 E/mJ	中心波长 λ/nm	光谱宽度 $\Delta\lambda/nm$	脉冲宽度 τ/fs
π	仿真	20.3	10	2.03	1030	14	115
	实验	16.1	10	1.61	1030	16	149
σ	仿真	29.1	10	2.91	1034	13	117
	实验	28.7	10	2.87	1037	11	178

3.3 Yb:CYA 晶体放大结果分析

Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振放大参数的比较见表 2. 实验结果与放大模型计算的 Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振下的增益发射性质基本一致. 在 1000—1060 nm 内, Yb:CYA 晶体 π 偏振的激光发射截面峰值在 1005.7 nm 出现, 大小为 $1.28 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, 且中心位于 1025.1 nm 处的增益凹陷有利于抑制放大过程中的增益窄化效应. 因此, 实验研究和仿真计算得到的放大光谱均往短波处偏移且无明显的增益窄化. 特别是放大光谱 1030 nm 的中心波长与 Yb:YAG 的增益峰重合, 因此可采用千瓦级的 Yb:YAG 薄片激光装置进行行波放大, 是产生单脉冲能量百毫焦量级飞秒激光一个可行的技术路线.

Yb:CYA 晶体 σ 偏振增益发射谱十分平坦, 处于 1000—1050 nm 范围内的发射截面均大于 $0.7 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, 非常适合产生高功率的放大激光. 但不同频率成分增益一致带来的问题是, 种子光谱的中心频率会在增益竞争中占据主导地位, 会产生不同程度的增益窄化. 在仿真计算中, 采用放大光谱从最初的 15 nm 窄化至 13 nm. 而在实验研究中, 放大光谱从最初的 15 nm 窄化至 11 nm. 可以看出, 实际放大过程中的增益窄化效应的影响更大. 因此, 在 Yb:CYA 晶体 σ 偏振的放大过程中, 有必要研究增益编辑的手段对种子光谱进行整形, 以同时获得高平均功率和窄脉冲宽度的输出.

4 结论与展望

本文开展了对 Yb:CYA 晶体 π 和 σ 偏振放大特性的理论和实验研究. 在理论研究中, 根据 Yb:CYA 晶体的热透镜焦距, 设计了热稳定性良好的模式可调再生腔; 并对晶体 π 和 σ 偏振的放大输出能量和光谱进行计算, 以此指导实验. 在 10 kHz 重复频率下, 从 Yb:CYA 晶体 π 偏振的放大实验中, 获得了平均功率 16.1 W、光谱中心 1030 nm、光谱半高宽 16 nm 的输出, 压缩后脉冲宽度为 149 fs, 压缩效率为 92.1%, 对应的峰值功率大于 9.5 GW; 在 σ 偏振获得了平均功率 28.7 W、光谱中心 1037 nm、光谱半高宽 11 nm 的输出, 压缩脉冲宽度为 178 fs, 压缩效率为 91.5%, 对应的峰值功率大于 14.2 GW. 结合实验结果与理论计算可以得出, 由于 Yb:CYA 晶体 π 偏振的发射截面在 1025.1 nm 附近的凹陷, 有利于抑制增益窄化, 因此适合宽光谱的激光放大; 在 1000—1060 nm 内, σ 偏振的增益截面更大, 有利于获得高平均功率的激光放大.

以上研究结果实现了目前 Yb:CYA 晶体最高平均功率和最大单脉冲能量的再生放大输出, 但 Yb:CYA 晶体的潜力远不止此. 对 Yb:CYA 晶体的行波放大模拟结果如图 12(a) 所示, 将 Yb:CYA 再生放大器输出的平均功率 28.7 W 的激光, 注入第 1 级泵浦功率 400 W 的 4 通行波放大器可以获

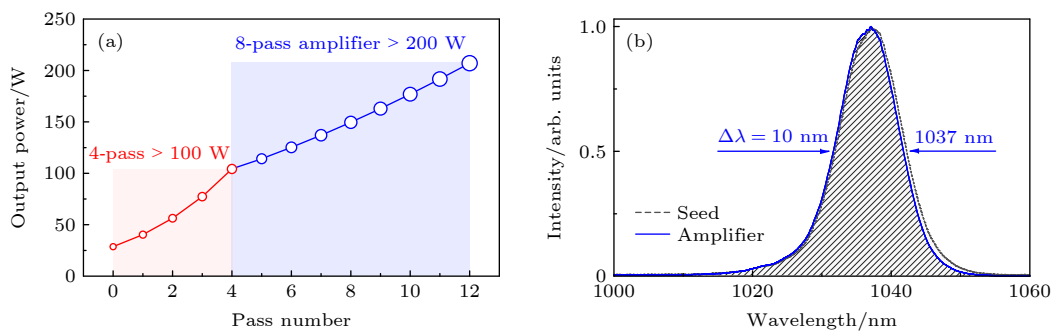


图 12 Yb:CYA 晶体的行波放大仿真 (a) 输出功率; (b) 放大光谱

Fig. 12. The simulation results of the Yb:CYA traveling-wave amplifier: (a) Output power; (b) amplified spectrum.

得平均功率 104.2 W 的输出, 继续通过第 2 级泵浦功率 500 W 的 8 通行波放大器可以将平均功率提升至 207.1 W. 经过两级行波放大后的光谱如图 12(b) 所示, 中心波长为 1037 nm, 光谱宽度为 10 nm. 压缩后有望获得最高平均功率 200 W、最大单脉冲能量 20 mJ、脉冲宽度小于 200 fs 的激光输出. 上述光源将为高重复频率阿秒光源^[24]、太赫兹^[25]以及激光离子加速^[26]领域的研究奠定光源基础.

参考文献

- [1] Midorikawa K 2022 *Nat. Photonics* **16** 267
- [2] D'Arcy R, Chappell J, Beinortaite J, et al. 2022 *Nature* **603** 58
- [3] Lloyd-Hughes J, Oppeneer P M, Pereira dos Santos T, et al. 2021 *J. Phys. Condens. Matter* **33** 353001
- [4] Maiuri M, Garavelli M, Cerullo G 2020 *J. Am. Chem. Soc.* **142** 3
- [5] Kroll F, Brack F E, Bernert C, et al. 2022 *Nat. Phys.* **18** 316
- [6] Lin Z Y, Hong M H 2021 *Ultrafast Sci.* **2021** 9783514
- [7] C. Phillips K, H. Gandhi H, Mazur E, Sundaram S K 2015 *Adv. Opt. Photonics* **7** 684
- [8] Iwasawa H 2020 *Electron. Struct.* **2** 043001
- [9] Zheng W, Jiang P Z, Zhang L F, Wang Y, Sun Q, Liu Y Q, Gong Q H, Wu C Y 2021 *Rev. Sci. Instrum.* **92** 043709
- [10] Miao J W, Ishikawa T, K. Robinson I, M. Murnane M 2015 *Science* **348** 530
- [11] Auböck G, Consani C, Mourik F V, Chergui M 2012 *Opt. Lett.* **37** 2337
- [12] Hönninger C, Paschotta R, Graf M, et al. 1999 *Appl. Phys. B* **69** 3
- [13] Zhu J F, Tian W L, Gao Z Y, Wei Z Y 2017 *Chin. J. Lasers* **44** 0900001 (in Chinese) [朱江峰, 田文龙, 高子叶, 魏志义 2017 *中国激光* **44** 0900001]
- [14] Bai C, Tian W L, Wang G Y, Zheng L, Xu R, Zhang D C, Wang Z H, Zhu J F, Wei Z Y 2021 *Chin. J. Lasers* **48** 0501005 (in Chinese) [白川, 田文龙, 王阁阳, 郑立, 徐瑞, 张大成, 王兆华, 朱江峰, 魏志义 2021 *中国激光* **48** 0501005]
- [15] Russbueldt P, Mans T, Weitenberg J, Hoffmann H D, Poprawe R 2010 *Opt. Lett.* **35** 4169
- [16] Negel J P, Voss A, Ahmed M A, Bauer D, Sutter D, Killi A, Graf T 2013 *Opt. Lett.* **38** 5442
- [17] Li D Z, Xu X D, Zhu H M, Chen X Y, Tan W D, Zhang J, Tang D Y, Ma J, Wu F, Xia C T, Xu J 2011 *J. Opt. Soc. Am. B* **28** 1650
- [18] Rudenkov A, Kisel V, Yasukevich A, Hovhannesyan K, Petrosyan A, Kuleshov N 2016 *Opt. Lett.* **41** 2249
- [19] Rudenkov A, Kisel V, Yasukevich A, Hovhannesyan K, Petrosyan A, Kuleshov N 2018 *Devices Methods Meas.* **9** 205
- [20] S. Petrov L, Georgiev K, Velkov D, Trifonov A, Xu X D, Xu J, Buchvarov I 2022 *Conference on Lasers and Electro-Optics San Jose The United States of America*, May 15–20, 2022 pJTh3B.23
- [21] Loiko P, Becker P, Bohatý L, et al. 2017 *Opt. Lett.* **42** 2275
- [22] Dörring J, Killi A, Morgner U, Lang A, Lederer M, Kopf D 2004 *Opt. Express* **12** 1759
- [23] Kroetz P, Rühl A, Murari K, Cankaya H, Kärtner F X, Hartl I, Miller R J D 2016 *Opt. Express* **24** 9905
- [24] Ye P, Oldal L G, Csizmadia T, Filus Z, Grósz T, Jójárt P, Seres I, Bengery Z, Gilicze B, Kahaly S, Varjú K, Major B 2022 *Ultrafast Sci.* **2022** 9823783
- [25] Wang T Z, Lei H Y, Sun F Z, Wang D, Liao G Q, Li Y T 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 085205 (in Chinese) [王天泽, 雷弘毅, 孙方正, 王丹, 廖国前, 李玉同 2021 *物理学报* **70** 085205]
- [26] Ma W J, Liu Z P, Wang P J, Zhao J R, Yan X Q 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 084102 (in Chinese) [马文君, 刘志鹏, 王鹏杰, 赵家瑞, 颜学庆 2021 *物理学报* **70** 084102]

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics • COVER ARTICLE

Yb:CaYAlO₄ regenerative amplifier*

Wang Ge-Yang¹⁾ Bai Chuan¹⁾ Mai Hai-Jing¹⁾ Zheng Li¹⁾
 Tian Xuan¹⁾ Yu Yang²⁾ Tian Wen-Long^{1)†} Xu Xiao-Dong⁴⁾
 Wei Zhi-Yi³⁾ Zhu Jiang-Feng^{1)‡}

1) (*School of Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China*)

2) (*Academy of Advanced Interdisciplinary Research, Xidian University, Xi'an 710071, China*)

3) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics,
 Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

4) (*School of Physics and Electronic Engineering, Jiangsu Normal University, Xuzhou 221116, China*)

(Received 9 November 2022; revised manuscript received 22 December 2022)

Abstract

Attosecond science is one of the driving forces for developing the femtosecond amplifiers of high average power and ultrashort pulse duration. In this work, the regenerative amplification is studied experimentally and theoretically based on Yb:CaYAlO₄ crystal for the practical needs of high-repetition-rate attosecond light sources. In the theoretical study, a mode-tunable regenerative cavity with good thermal stability is designed based on the thermal lens calculations of Yb:CaYAlO₄ crystal; the amplified output energy and spectra of π and σ polarization of the crystal are calculated. In the experiment, the π -axis of Yb:CaYAlO₄ crystal is parallel to the laser polarization, and the laser amplifier emits 1.61 mJ pulses with average power 16.1 W. Notably, the dip of the π -polarization emission spectrum near 1025.1 nm compensates for the gain narrowing of the seed laser during amplification. Thus, the center wavelength and the spectral full width at a half maximum of the amplified laser are 1030 nm and 16 nm respectively. Using a grating-pair for compression, 149 fs pulses with peak power 9.5 GW are obtained. In comparison, the σ -polarization emission spectrum of Yb:CaYAlO₄ crystal is relatively flat in a range from 1000 to 1050 nm, but with a larger gain cross-section. When the laser polarization is parallel to the σ -axis of Yb:CaYAlO₄ crystal, 2.87 mJ pulses at 10 kHz repetition rate are achieved, with an average power of 28.7 W. In this case, the center wavelength and the spectral full width at half maximum of the amplified laser are 1037 nm and 11 nm respectively. Using a grating-pair for compression, 178 fs pulses with peak power of 14.2 GW are obtained. The beam quality factor measured is 1.09 along the x -axis of the amplified laser and 1.17 along the y -axis. To the best of our knowledge, this is the highest average power and the maximum pulse energy obtained from the Yb:CaYAlO₄ amplifier. For applications in high-repetition-rate attosecond light sources, terahertz generation and optical parametric amplification, subsequent laser outputs with average power 200 W, pulse energy 20 mJ and pulse duration less than 200 fs are expected to be achieved by adding two stages of traveling-wave amplification.

Keywords: ytterbium-doped laser crystal, regenerative amplifier, high power femtosecond laser, attosecond science

PACS: 42.55.-f, 42.55.Xi, 42.60.Da, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.72.20222141

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFB4601102), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774277, 61975071), the Natural Science Basic Research Program of Shaanxi, China (Grant No. 2019JCW-03), and the Science and Technology Program of Xi'an, China (Grant No. 202005YK01).

† Corresponding author. E-mail: wltian@xidian.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: jfzhu@xidian.edu.cn



Yb:CaYAlO₄再生放大器

王阁阳 白川 麦海静 郑立 田轩 于洋 田文龙 徐晓东 魏志义 朱江峰

Yb:CaYAlO₄ regenerative amplifier

Wang Ge-Yang Bai Chuan Mai Hai-Jing Zheng Li Tian Xuan Yu Yang Tian Wen-Long Xu Xiao-Dong Wei Zhi-Yi Zhu Jiang-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 054204 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222141

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222141>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于M型掺镱光纤的近单模2 kW光纤放大器

Near-single-mode 2-kW fiber amplifier based on M-type ytterbium-doped fiber

物理学报. 2022, 71(3): 034205 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211751>

基于锯齿波脉冲抑制自相位调制的高功率窄线宽单频脉冲光纤激光放大器

High-power narrow-linewidth single-frequency pulsed fiber amplifier based on self-phase modulation suppression via sawtooth-shaped pulses

物理学报. 2021, 70(21): 214202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210496>

基于双向正交泵浦半导体光放大器结构的全光相位保持幅度再生技术

All-optical phase-preserving amplitude-regeneration technology based on bidirectional orthogonal-pumped semiconductor optical amplifier configuration

物理学报. 2022, 71(20): 204204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220703>

窄线宽纳秒脉冲光纤拉曼放大器的理论模型和数值分析

Theoretical and numerical study on narrow-linewidth nanosecond pulsed Raman fiber amplifier

物理学报. 2018, 67(15): 154202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172679>

少模光纤放大器中的准静态模式不稳定实验研究

Quasi-static mode instability in few-mode fiber amplifier

物理学报. 2018, 67(14): 144203 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180140>

一种可用于轨道角动量的受激布里渊放大的光子晶体光纤放大器

Design of photonic crystal fiber amplifier based on stimulated Brillouin amplification for orbital angular momentum

物理学报. 2022, 71(7): 074206 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211909>

专题: 阿秒物理

高电荷态离子阿秒激光光谱研究展望*

张大成^{1)†} 葛韩星¹⁾ 巴雨璐¹⁾ 汶伟强²⁾ 张怡¹⁾陈冬阳²⁾ 汪寒冰²⁾ 马新文²⁾

1) (西安电子科技大学光电工程学院, 西安 710071)

2) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

(2023年6月14日收到; 2023年8月8日收到修改稿)

高电荷态离子 (highly charged ions, HCI) 的光谱测量不仅可以检验量子电动力学效应和相对论效应等基本物理模型, 还能够为天体物理、聚变等离子体物理甚至 HCI 光钟等研究提供关键原子物理数据. HCI 离子能级跃迁大多在极紫外甚至 X 射线波段, 受限于目前的光源技术较难直接产生该波段激光, 实验室对于 HCI 离子的激光光谱测量十分有限. 阿秒光源具有极紫外甚至软 X 波段的高光子能量和超短的脉冲持续时间, 为实验室开展 HCI 的光谱测量与超短能级寿命研究等提供了新的机遇. 本文分析了目前国际上利用同步辐射光、自由电子激光以及飞秒高次谐波等光源已开展的一些 HCI 离子光谱实验测量的基本方法、研究进展等, 总结了阿秒光源、离子靶等技术的研究现状, 讨论了将极紫外阿秒光源与不同 HCI 离子靶的技术结合开展 HCI 离子阿秒时间分辨激光光谱测量的可行性, 并提出了一个 HCI 离子阿秒光谱测量的初步设计方案, 为未来开展 HCI 光谱精密测量与离子能级寿命测量等研究提供参考.

关键词: 阿秒脉冲, 高电荷态离子, 精密激光光谱, 能级结构**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.-t, 42.62.Fi, 32.30.Rj**DOI:** 10.7498/aps.72.20230986

1 引言

高电荷态离子 (highly charged ion, HCI), 又称高离化态离子, 是指原子被剥掉多个核外电子后处在高度带电状态的离子, 其广泛存在于各种天体和人工制造的等离子体中^[1]. 宇宙中超过 95% 的可见物质是由等离子体组成的, 其中恒星、超新星、近恒星云、激波和活跃星系核喷射物等处于高温等离子体状态, 包含大量的 HCI 离子, 它们主要是通过光电离和电子碰撞电离产生^[2]. HCI 光谱是了解天体物质成分、离子所处天体的等离子体环境状态等关键参数最直接甚至是唯一的手段, 对于理解和发展天体物理和宇宙模型必不可少^[3]. HCI 的

光电离截面、光吸收截面、能级寿命、跃迁速率等基本参数, 对于研究从太阳日冕到星系中心黑洞周围的吸积盘等天体物理中等离子体的密度、温度等特性具有重要意义^[4,5]. 目前对于低价离子的光电离实验数据和理论模型计算结果符合比较好, 但对于高价 HCI 离子, 理论计算与实验测量值偏差较大, 需要大量高精度的绝对光电离截面测量数据来验证及修正相关理论模型^[6,7]. 因此, 实验室开展 HCI 光谱测量可为天文观测提供高精度光谱数据库和建立天体演化模型提供重要数据支撑^[8].

与中性原子或低电荷态离子相比, HCI 随着离子核电荷数 Z 的不断增高, 其核外电子所能感受到的原子核的库仑场强不断增强, 离子能级结构中涉及的量子电动力学 (quantum electrodynamics,

* 国家自然科学基金 (批准号: U2032136, U2241288) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dch.zhang@xidian.edu.cn

QED) 效应 ($\sim Z^4$)、相对论效应 ($\sim Z^2$)、超精细分裂 ($\sim Z^3$) 及原子核尺寸效应 ($\sim Z^5 \sim Z^6$) 等会急剧增大^[9]. 因此, 开展不同核电荷数 Z 的 HCl 光谱的精密测量, 对于理解 QED 效应、相对论效应、甚至开展原子核性质研究具有至关重要的意义^[2]. 其中 HCl 中基态超精细分裂 (hyperfine splitting, HFS) 精密测量是精确检验 QED 效应的理想体系^[10]. 除此之外, HCl 能级寿命测量对于原子结构的理论发展十分重要. 测量 HCl 短寿命能级的传统实验方法包括束箔技术、重离子存储环、离子阱等^[5,11–17], 这些实验方法主要是研究 ms 至 ns 量级的寿命. 然而, 重离子的能级寿命随核电荷序数 Z 的增加急剧变短, 达到飞秒甚至更短时间尺度, 使得相关短寿命能级与光谱的实验测量数据十分有限. 因此, 发展新方法开展高 Z 重离子的超短寿命能级测量对于能级结构的理解具有重要意义. 再者, 深入理解认识 HCl 对光的发射和吸收对于模拟地球等离子体、核聚变研究以及探索热致密物质的状态方程至关重要^[2].

HCl 光谱精密测量的实验数据仍然非常有限, 以往主要是通过被动观测光谱测量获得, 其测量精度与灵敏度均有待提高^[18,19]. 利用激光主动激发的激光光谱技术是获得高精度光电离截面、能级结构、能级寿命等数据的重要方法^[20]. 然而, HCl 的电离能从数 eV 到数百 eV 不等, 实验室制备的离子靶密度又通常较低 ($\sim 10^6 \text{ cm}^{-3}$), 比气体靶中的中性原子或分子的数量密度小 5—10 个数量级, 因此, 实验室开展 HCl 激发光谱测量需要非常高的光子能量和光子通量^[21]. 目前对于 HCl 共振激发光谱实验研究仅有利用自由电子激光、同步辐射等光源完成的有限工作. 阿秒光源是利用飞秒激光驱动气体靶等通过非线性效应产生的具有极短脉冲的极紫外波段的相干光, 具有高光子能量、超短脉冲宽度以及高峰值功率等特点. 特别是随着先进阿秒光源、欧洲极端光设施 (ELI-ALPS) 等重大阿秒科学大科学设施的建设, 更高通量、重频、光子能量的大型极紫外超快光源可以在未来提供, 这使得利用阿秒光源开展 HCl 的激光光谱测量成为可能.

本文总结了国际上利用同步辐射光、自由电子激光器以及飞秒高次谐波等光源开展 HCl 光谱测量的进展. 通过分析这些光源与阿秒光源的参数特点, 讨论了未来利用阿秒光源开展 HCl 离子能级寿命、能级结构测量的可行性, 为理解天文光谱观

测、QED 理论模型检验、核聚变中热束缚条件下的等离子体规律温热稠密物质的状态方程等研究提供参考.

2 HCl 激发光谱测量进展

共振激光光谱学方法是研究原子和分子结构最灵敏、最精确的工具之一. 1992 年, 丹麦奥胡斯大学利用 ASTRID 存储环 (Aarhus storage ring in Denmark, ASTRID) 开展了 100 keV 的 ${}^7\text{Li}^+$ 离子的激光冷却和高精度光谱测量. 利用可见光波段激光将亚稳态 $1s2s \text{ }^3\text{S}_1$ 的 ${}^7\text{Li}^+$ 激发到 $1s2p \text{ }^3\text{P}_2$ 态, 并通过 $F'' = 5/2 - F' = 7/2$ 的 HFS 进行激光冷却, 测得其静止时的跃迁波长为 548.6 nm, 上能级寿命为 43 ns^[22]. 1994 年, Klaft 等^[23] 在德国重离子研究中心 GSI 的重离子存储环 ESR 上, 采用激光诱导荧光技术测量了类氢 ${}^{209}\text{Bi}^{82+}$ 基态超精细结构 $F = 4$ 至 $F = 5$ 的跃迁波长为 243.87(4) nm, $F = 5$ 亚能级的寿命为 0.351(16) ms, 这也是人们在光学系统中首次直接观测到 HFS. 2017 年德国 GSI 的 Ullmann 等^[24] 完成了类氢和类锂 Bi 离子的 HFS 精密测量实验, 实验与理论结果差异巨大, 提出了所谓的“超精细分裂之谜”. 这些精密测量实验极大地激发了人们开展基于原子分子以及 HCl 精密测量的兴趣. 德国 GSI 上的 HITRAP 减速器将 HCl 离子能量降低至 6 keV/u, 然后被 Penning 阱捕获, 并通过电子冷却和电阻冷却将离子冷却到液氮温度, 进而可以开展 HCl 的高精度激光光谱测量^[25]. 电子束离子阱 (electron beam ion trap, EBIT) 技术的发展, 使得在实验室可以更容易地获得高电荷态的中重质量离子, 并通过光谱测量这些离子的精细和超精细结构. 2011 年, 德国海德堡的马克斯·普朗克核物理研究所的科研人员利用线宽为 1.2 GHz 染料激光器在 EBIT 中开展类硼离子 Ar^{13+} 的 $1s^2 2s^2 2p$ 的 ${}^2\text{P}_{3/2} \rightarrow {}^2\text{P}_{1/2}$ 跃迁的共振激光光谱学实验, 测得亚稳态 ${}^2\text{P}_{3/2}$ 的寿命为 9.573 ms; 结合蒸发冷却技术后, 进一步得到 Ar^{13+} 离子的 $1s^2 2s^2 2p$ 的 ${}^2\text{P}_{3/2} - {}^2\text{P}_{1/2}$ 跃迁的精确波长为 441.25568 (26) nm, 测量精度达到了 $\Delta\lambda/\lambda = 6 \times 10^{-7}$, 尽管这与理论值 441.261(70) nm 已经符合得很好, 但理论计算精度比实验测量低 2 个数量级, 从而对多电子体系能级理论计算提出挑战^[3]. 2015 年, 该研究所在低温射频离子阱中, 利用激光冷却的方式

将 Be⁺成功冷却到亚开尔文温度, 实现了库仑晶化束和 Ar¹³⁺离子的协同冷却, 从而有效抑制了多普勒效应引起的谱线展宽, 极大地提高了激光光谱实验的分辨率, 为高精度检验新型原子钟和自然常数等奠定了基础^[26].

由于 HCI 的跃迁主要在 XUV 甚至 X 射线波段, 可见光波段所能测量的离子光谱十分有限, 开展更多 HCI 能级测量需要适于激发离子能级跃迁的激光光源. 同步辐射可以提供高亮度的极紫外至 X 射线波段光源, 很早便被用于 HCI 激发光谱研究. 早在 20 世纪 80 年代, Lyon 等^[27]首次在英国 Daresbury 的同步辐射光源进行了 Ba⁺离子的光电离实验. 他们利用光子能量 16.0—29.5 eV 的同步辐射光对基态 Ba⁺的光电离的绝对截面进行了测量, 获得了 75 个电离峰, 其中最高的峰对应的光电离截面大于 10⁻¹⁵ cm². 2002 年, Covington 等^[28]利用美国劳伦斯伯克利国家实验室先进光源 (advanced light source, ALS) 结合离子-光子束 (IPB) 终端, 在 40—71 eV 光子能量范围内测量了 Ne⁺的 2P_{2/3}⁰ 态和 2P_{1/2}⁰ 态的绝对光离截面, 光谱分辨率在 22—2 meV 内. 2005 年, Bizau 等^[29]利用 ASTRID 储存环上产生的同步辐射激发由电子回旋共振 (electron cyclotron resonance, ECR) 离子源产生的 N²⁺, N³⁺, O³⁺, O⁴⁺, F³⁺, F⁴⁺和 Ne⁴⁺等离子, 测量了它们的绝对光电离截面. 2010 年, Simon 等^[30]利用德国 BESSY II 同步辐射产生的高光子通量 X 射线和 FLASH-EBIT 装置产生的 N³⁺, Ar⁸⁺等离子, 研究了其光电离过程, 从而将共振光谱学扩展到软 X 射线波段, 为理论模型检验提供了高分辨高精度的实验数据. 2013 年, Rudolph 等^[31]利用德国汉堡 DESY 同步光源的 PETRA III 所产生的光子能量约 6.6 keV 的单色 X 射线测量了从类氦到类氟铁离子 (Fe²⁴⁺到 Fe¹⁷⁺) 的 K α 跃迁的光吸收, 并计算了它们的跃迁几率和跃迁能量. 2014 年, Schippers 等^[32]将光子-离子共线束应用于 PETRA III 的新光子-离子光谱仪, 测量了 Xe^{q+} (q = 1—5) 离子的多光子电离, 以及 Ne⁺的单光子、双光子和三光子电离^[33], W⁴⁺的单光子电离^[34], Fe⁺单光子 m 次光电离 (m = 1, 2, ..., 6) 的绝对截面^[35]. 尽管利用同步辐射可以实现对 HCI 共振激发光谱的研究, 然而同步辐射装置无法获得飞秒量级的脉冲宽度, 不能开展高时间分辨光谱测量.

自由电子激光能产生极紫外甚至 X 射线波段

的相干光, 其脉冲宽度可短至 fs 量级, 峰值功率高, 能在获得高单色性的同时保持较高的峰值功率. 位于德国 DESY 的 FLASH 是国际上第一台工作在 XUV、软 X 射线波段的自由电子激光器, 其光子能量可以覆盖原子序数 Z = 15 (所需激发光子能量约为 20 eV) 到 Z = 75 (所需激发光子能量约为 200 eV) 的类锂离子 2²S_{1/2}—2²P_{1/2} 跃迁光谱测量实验^[2], 结合为软 X 射线波段光谱研究设计的 EBIT, 可开展 XUV 波段的 HCI 离子的共振荧光激光光谱实验. FLASH 以及 XFEL 自由电子激光能提供几 eV 至几十 keV 的光子, 可研究周期表中大部分元素类锂离子的 2²S_{1/2}—2²P_{1/2} 跃迁 (图 1)^[36]. 2007 年, Epp 等^[36]将自由电子激光 FLASH 和 EBIT 结合, 首次利用自由电子激光测量了类锂 Fe²³⁺离子的共振荧光光谱, 研究了 HCI 离子兰姆位移密切相关的 1s²2s 2²S_{1/2} 态到 1s²2p 2²P_{1/2} 态的跃迁 (48.6 eV). 然而受限于光源技术, 目前对于 X 射线波段内得到的能级跃迁精度比可见光范围内 HCI 的精细和超精细跃迁仍要相差几个量级.

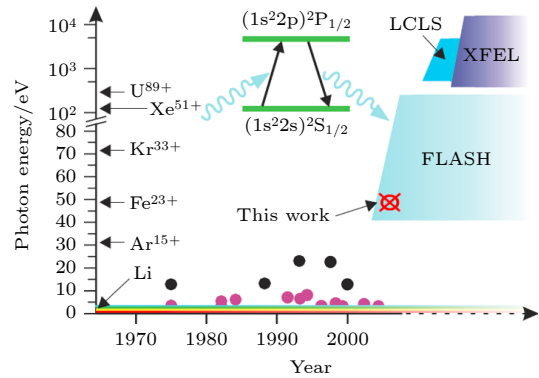


图 1 FLASH 和 XFEL 光子能量范围与可研究的 2S_{1/2}—2P_{1/2} 跃迁离子种类^[36]

Fig. 1. Photon energy range covered by FLASH and XFEL and transition energy 2S_{1/2}—2P_{1/2} for some systems^[36].

飞秒激光驱动产生的高次谐波 (HHG) 作为一种台面式低成本的极紫外相干光源, 其所产生的光子能量最高已达 keV^[37]. 2015 年, Rothhardt 等^[38]提出了将高功率飞秒 HHG 光源与 GSI 重离子束冷却储存环结合进行类锂银离子 XUV 波段激光光谱学研究. 如图 2(a) 所示, 他们采用重频为 MHz 的高功率飞秒光纤激光器驱动气体靶在 40 nm (光子能量约 30 eV) 处产生的单个谐波通量可以达到 10¹³ 光子/s, 其辐射通量已达到与同步辐射相当的水平, 并且共振增强腔 HHG 可以产生光子能

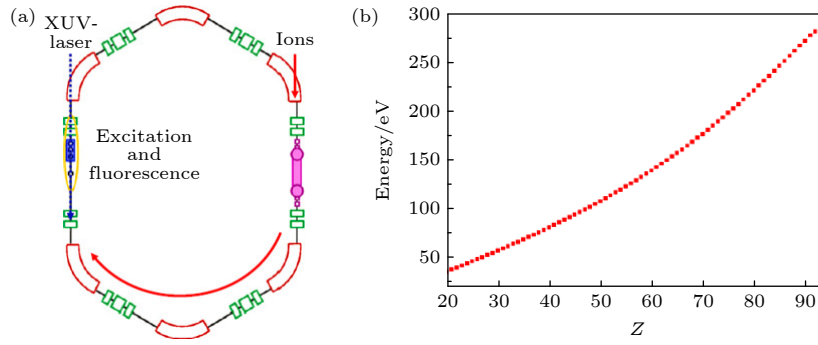


图 2 (a) 德国储存环 ESR 上开展 XUV 波段激光光谱的实验装置示意图; (b) 类锂离子 ${}^2S_{1/2}-{}^2P_{1/2}$ 跃迁能级间隔与 Z 的关系图^[38]
 Fig. 2. (a) Schematic of an XUV laser spectroscopy experiment at the storage ring ESR in Germany; (b) ${}^2S_{1/2}-{}^2P_{1/2}$ transition energies for Li-like ions plotted as a function of the nuclear charge Z ^[38].

量带宽减小到 $\Delta E/E$ 约为 3×10^{-3} 的窄带谐波, 从而有望在重离子冷却储存环上开展相对论能量的 $Z = 47$ 的类锂离子的 ${}^2S_{1/2}-{}^2P_{1/2}$ 跃迁 (跃迁能量约 100 eV) 光谱测量, 这为 QED 效应和核修正检验提供了高灵敏度的检测方法, 他们通过计算估计实验测量的荧光计数率可达到每秒几十个. 利用高功率飞秒激光振荡器通过共振增强腔产生的 HHG 光子能量较低, 通常在 5—25 eV, 只能够测量 $Z = 18$ 以下的 HCI 的 ${}^2S_{1/2}-{}^2P_{1/2}$ 的跃迁能级以及 QED 效应随 Z 序数的变化规律. 利用飞秒放大器驱动的桌面式 HHG 系统的光子能量可达 20—200 eV, 光子通量可达 10^{13} 光子/s, 可以开展更宽范围的 HCI 光谱测量, 但其产生的光源单色性较差, 因此仍需研究如何将 HHG 所产生的 XUV 光的线宽 ($\Delta\lambda/\lambda$) 压缩至 10^{-4} 以下, 以提高 HCI 能级跃迁的测量精度^[39].

3 HCI 离子阿秒激光光谱测量分析

飞秒激光驱动 HHG 的极紫外辐射具有飞秒甚至阿秒级的超快时间特性, 且 HHG 与驱动激光天然同步, 可开展最短至阿秒级时间分辨的光谱实验. 特别是台面式极紫外 HHG 光源已经较为成熟, 许多实验室已利用台面式极紫外 HHG 开展光谱实验^[40]. 对于 HCI 离子短波长的跃迁, 激发截面非常小, 而光源光子通量、辐射收集效率以及实验室可制备的 HCI 密度等仍然比原子激光光谱测量等弱几个数量级. 因此, 要实现对 HCI 离子高激发态能级以及截面更小的跃迁的测量, 需要高通量、高重频的阿秒光源, 或者是能够产生高电荷态、高流强的离子靶, 同时还需要发展高灵敏的探测方法.

欧洲以及中国等也都在建设阿秒大科学装置, 这些阿秒大科学装置可以提供更高光子通量和光子能量的光源, 进而开展极紫外波段, 飞秒乃至阿秒时间分辨的 HCI 离子能级结构、能级寿命测量实验. 国际上已建成的大型离子束装置有德国重离子研究中心 GSI 的 ESR、中国科学院近代物理研究所的 CSR 等, 以及德国正在建设的 FAIR 项目和中国正在建设的 HIAF 项目等. 由于阿秒光源与离子束装置的建设与运行维护等需要完全不同的技术, 目前国际上尚没有同时具备阿秒光源大科学装置与重离子加速器等两大科学装置的实验室. 为实现对 HCI 离子的阿秒激光光谱测量, 可以根据待测体系的特点以及各类不同光源、离子束装置的特点, 分别在阿秒大科学装置上建设 HCI 光谱测量终端以及在重离子加速器冷却储存环上增加台面式极紫外阿秒光源的 HCI 离子激光光谱测量平台. 本节将分别从光源、离子靶以及测量方法等方面讨论 HCI 离子阿秒时间分辨激光光谱测量可能的方案与可行性.

3.1 极紫外阿秒光源

自 2001 年首次获得阿秒脉冲以来^[41], 实验室产生阿秒光源的主要方式仍是利用飞秒激光驱动气体靶产生极紫外高次谐波. 2017 年, 瑞士苏黎世联邦工业大学 (ETH) 使用台面式 Ti:Sa 飞秒激光经过光参量放大 (OPA), 产生了 1.8 μm 红外驱动激光, 经空芯光纤压缩后, 脉宽为 11.5 fs, 脉冲能量为 480 μJ . 再利用该飞秒激光驱动氖或氩气体, 产生了最短脉宽为 43 as 的孤立脉冲, 最高光子能量达到 180 eV, 带宽近 100 eV^[42]. 此外, 他们还利用单脉冲能量 2.5 mJ 的钛宝石飞秒激光驱动高压

氦气, 已经产生了 100—350 eV 的软 X 射线超连续谱, 利用这一超宽带软 X 射线光源可以对碳的 K 壳层吸收边和硫的所有 L 壳层吸收边进行瞬态吸收光谱测量^[40]. 同年, Müller 等^[34]使用光参量啁啾脉冲放大器 (OPCPA) 产生了载波包络相位 (CEP) 稳定的 1.8 μm 飞秒驱动激光脉冲, 脉宽为 12 fs, 重复频率为 1 kHz. 他们利用该中红外飞秒激光驱动氦气, 获得了脉宽为 53 as, 100—330 eV 的超带宽极紫外阿秒光脉冲, 并将其应用于碳 K 壳层吸收光谱的研究. 随着全固态飞秒激光技术的发展, 具有 MHz 重频的高功率、窄脉宽全固态飞秒激光也已经成为实验室产生 HHG 的重要驱动光源, 利用其产生的 HHG 光子通量已可以达到 3×10^{13} 光子/s^[43], 能够满足 HCI 离子光谱测量需求. 除此之外, 德国耶拿大学利用高重频高功率光纤飞秒激光器为在重离子加速器上开展 XUV 波段激光光谱实验研制光源. 光纤飞秒激光器产生的 1 μm 波段激光经倍频和脉宽压缩后驱动气体靶, 在光子能量为 26.5 eV 的单谐波线上获得了功率为 (12.9 ± 3.9) mW 的极紫外光脉冲, 对应的光子通量为 3×10^{15} 光子/s, 在 30 eV 以上的光子能量下平均功率也已大于 1 mW^[44].

国际上正在建设多个可提供高通量、高光子能量阿秒脉冲的阿秒大科学装置, 包括欧洲极端光基础设施阿秒脉冲光源 (ELI-ALPS)、北京怀柔综合极端条件实验室以及正在筹建的先进阿秒光源等. ELI-ALPS 设计有 5 条光束线, 其中 4 条光束线利用气体靶产生高次谐波 (GHHG), 一条束线通过表面等离子体相干尾流发射产生的新型表面高次

谐波 (SHHG). ELI-ALPS 在平均功率、脉冲持续时间和重复频率等方面比台式的极紫外阿秒光源等有很大提高, 其能够提供的最高光子能量为 120 eV, 最大光子通量为 1.25×10^{12} 光子/s, 最短脉冲小于 500 as^[45]. 北京怀柔的综合极端条件实验装置 (SECUF) 中也包含了阿秒光源 (ALS), 共有 4 条 XUV 光束线. 第 1 束线是一个中心光子能量约为 90 eV 的高能亚 100 as 束线, 重复频率为 1 kHz; 第 2 束线由 200 kHz—1 MHz 的高功率飞秒光纤激光器驱动, 具有高的重复频率以及窄的 XUV 带宽; 第 3 束线是由 CEP 稳定的亚 10 fs 钛蓝宝石激光脉冲驱动的单阿秒宽频 XUV 波束线, 重复频率为 10 kHz; 第 4 束线由 CEP 稳定的亚 10 fs OPCPA 激光脉冲驱动, 可以产生具有更高重复频率的宽带孤立阿秒脉冲, 重复频率达到了 100 kHz. 表 1 给出了 ALS (SECUF) 与 ELI-ALPS, RAL, seeded FEL 和 SASE FEL 等国际同类装置主要指标的对比. 这些光源都为实验室开展 HCI 高精度能级寿命测量以及高激发态能级测量等提供了非常好的光源条件.

3.2 HCI 离子靶

开展 HCI 离子精密光谱实验测量的另一个难题在于 HCI 靶的制备. 目前实验室产生 HCI 离子的主要方法有 EBIT、ECR 离子源和重离子加速器冷却储存环等.

3.2.1 电子束离子阱

EBIT 是一种结构紧凑、成本相对较低, 可以

表 1 ALS (SECUF) 与 HHG, seeded FEL 和 SASE FEL 等 XUV 光源的主要参数比较
Table 1. Comparison of ALS (SECUF) and other XUV light sources based on HHG, seeded FEL, and SASE FEL.

光源	产生方式	脉宽	光子通量/(光子·s ⁻¹)	调谐范围/eV	重复频率
ELI-ALPS	HHG	<100 as	1.25×10^{12}	10—120	1—100 kHz
ALS (SECUF) Beamline 1	HHG	<100 as	$\sim 10^9$ — 10^{10}	30—100	1—3 kHz
ALS (SECUF) Beamline 2	HHG	<200 fs	10^{11}	20—80	1 MHz
ALS (SECUF) Beamline 3	HHG	<200 as	10^{10}	50—100	10 kHz
ALS (SECUF) Beamline 4	HHG	<200 as	10^{11}	60—96	100 kHz
Artemis (RAL)	HHG	10—50 fs (APT)	1.8×10 @30 eV	10—100	1 kHz
LCLS (SLAC)	SASE FEL	10—1000 fs	10^{14}	500—800	120 Hz
Dreamline (SSRF)	SASE FEL	—	3.5×10^{11} @800 eV	20—2000	2 Hz
FLASH (DESY)	SASE FEL	50—200 fs	10^{12} — 10^{14}	24—310	10 Hz
FERMI (Elettra ST)	seeded FEL	150 fs	3.7×10^{13}	15.5—62.0	10 Hz
DCLS (Dalian)	seeded FEL	30/130/1000 fs	$> 2.5 \times 10^{13}$	8.3—25	—

产生和约束 HCl 的装置, 可以剥离原子中大部分电子使其成为 HCl 离子. 一个桌面级的 EBIT 甚至可以完全剥离最重的 U 原子的电子, 是研究低密度天体等离子体辐射的理想装置. EBIT 还可以将注入的低价离子逐渐剥离到高电荷态, 从而可以系统地研究各个价态离子的光谱. 目前, 利用 EBIT 在 HCl 离子的发射光谱测量方面已开展了大量工作, 包括跃迁光子的发射和吸收, 以及离子能级结构等 [12,46–49]. 国际上已有 DREEBIT 等公司可以提供商用 EBIT 装置 [50,51], 国内复旦大学等也根据光谱测量等实验需求自主研制了各类不同参数的 EBIT [52,53]. 为了研制超精密光学原子钟和寻找精细结构常数的变化, 2019 年, 中国科学院武汉物理与数学研究所和复旦大学合作研制了一台低能量、紧凑型的 Shanghai-Wuhan EBIT 作为 HCl 源, 能够产生 W^{14+} , Ar^{13+} 等光学离子钟所需的备选离子并测量了其发射光谱, 为开展光钟离子能级精密测量提供了有力工具 [54–57]. 由于 EBIT 束流较弱, 激光激发所得到的退激荧光计数率低, 测量难度较大, 目前只有德国在 FLASH 上利用 EBIT 开展了 HCl 离子的激光光谱实验测量 [36].

3.2.2 ECR 离子源

ECR 离子源是利用 ECR 产生高能电子, 高能电子与中性原子碰撞产生 HCl 离子, 再利用高压将 HCl 离子束引出磁约束腔体获得 HCl 束流的装置, 其产生的 HCl 离子流强可达 μA 甚至 mA [58,59]. 欧洲核子研究中心 (CERN) 的重离子注入 ECR 源可以产生超过 100 μA 的 Pb^{27+} 束流. 中国科学院近代物理研究所研制的 ECR 离子源产生的 O^{7+} 束流强度达到了 235 $e\mu A$, Ar^{11+} 束流强度达到了 240 $e\mu A$, Xe^{26+} 的束流强度也超过了 90 $e\mu A$ [60]. 丹麦奥胡斯大学就是利用 ASTRID 同步辐射光和 ECR 离子源结合, 开展了类铍的 N^{3+} , O^{4+} 等离子以及分子离子的实验测量 [29]. 近年来随着超导技术的发展, 超导 ECR 离子源得到快速发展. 美国劳伦斯伯克利国家实验室的 VENUS 离子源 [61] 以及中国科学院近代物理研究所的 SECRAL 离子源 [62] 相继建成, 并已为加速器提供束流. 其中, 中国的 SECRAL 能够产生的 Ar^{12+} 的束流强度达到了 1420 $e\mu A$, Xe^{26+} 的束流强度超过 1100 $e\mu A$, Xe^{30+} 的束流强度为 322 $e\mu A$, $^{209}Bi^{31+}$ 的束流强度为 680 $e\mu A$, $^{209}Bi^{50+}$ 的束流强度为 10 $e\mu A$ [63]. 可以看

出, 超导 ECR 源能够提供的束流强度和高电荷态较常规 ECR 源均有大幅提高, 非常有利于开展光激发截面小的 HCl 离子激光光谱测量.

3.2.3 重离子加速器冷却储存环

重离子加速器冷却储存环可以通过加速剥离的方式进一步提高前端离子源产生的 HCl 的电荷态, 从而获得高流强 HCl 离子束 [64]. 重离子加速器提供的离子束通常具有很高的能量, 例如在德国 ESR 以及兰州重离子加速器冷却器储存环 CSR_e 上, 离子速度均可达相对论能量. 根据多普勒效应, 这极大降低了探测 HCl 光谱时对激发激光光子能量的要求 [65–69]. 国际上利用加速器冷却储存环已开展了多种离子的激光光谱学研究. 早在 1990 年, Schröder 等 [70] 在德国 TSR 冷却储存环上利用 514.5 nm 的 Ar^+ 离子激光器和 584.8 nm 的环形染料激光器双向冷却的方式首次实现能量为 13.3 MeV/u 的 $^7Li^+$ 离子束的纵向冷却, 冷却温度达到了 3 K, 实验通过测量退激荧光的方式精密测量了类氢 $^7Li^+$ 的 $2s \ ^3S_1(F=5/2) \rightarrow 2p \ ^3P_2(F=7/2)$ 跃迁的波长 [71,72]. 2006 年, Schramm 等 [73] 利用 257 nm 的连续激光在德国 ESR 上首次开展了对相对论能量的 C^{3+} 离子束的激光冷却和激光精密谱学实验研究. 此后, 在该装置上利用可见光波段激光也实现了对类氢 $^{207}Pb^{81+}(F=0 \leftrightarrow F=1)$, $^{209}Bi^{82+}(F=4 \leftrightarrow F=5)$ 和类锂 $^{209}Bi^{80+}(F=1 \leftrightarrow F=2)$ 等离子体的 HFS 和寿命的精密测量 [24,74]. 2018 年, 中国科学院近代物理研究所与西安电子科技大学共同在 CSR_e 装置上使用 220 nm 的紫外激光, 实现了能量为 275.7 MeV/u 的类锂 $^{16}O^{5+}$ 离子束的激光冷却 [68,69], 并开展了 $^{16}O^{5+}$ 离子 $2s_{1/2}-2p_{1/2}$ 精密激光光谱学的初步测量. 目前, 国际上还在建设更高能量和流强的重离子加速器冷却储存环, 德国 GSI 在建的 FAIR 项目中, 两个同步加速器 SIS-100 和 SIS-300 预期可以将重离子束加速到几十 GeV/u [75,76]. 中国科学院近代物理研究所在广东惠州在建的强流重离子加速器装置 HIAF, 将超导直线加速器与高能同步加速器结合, 产生的离子束最高能量可达 GeV/u 量级 [77–79]. 这些新建的高能强流加速器上, 利用相对论多普勒频移效应, 结合台面式 XUV 光源未来能够将可测量的 HCl 能级跃迁从百 eV 量级推进至 keV 量级, 并能够测量更低激发截面的跃迁.

3.3 探测方法

3.3.1 荧光检测

激光泵浦-探测技术是高精度测量短寿命能级的方法,已广泛应用于中性原子能级寿命的测量^[16,20].其基本原理是通过调谐泵浦脉冲激光的波长与目标粒子能级共振,将粒子布居到待测激发态能级,并同步监测荧光信号,得到荧光最强时对应的激光波长获得跃迁能级精确信息.然后利用另一束探测激光经一定时间延迟后,以共振或非共振激发的方式将处于激发态的粒子进一步激发到另一个激发态或将目标粒子电离,通过同步监测高激发态的退激荧光光强或电离粒子产额随两束激光延迟间隔的演化得到目标激发态的能级寿命(图3).这种泵浦-探测实验对能级寿命测量的绝对精度,仅受到统计数据以及泵浦和探测激光脉冲脉宽的限制,可以为理论模型检验提供高精度的实验数据. HCI 离子的能级及其寿命等也可以通过激光泵浦-探测的方法进行精密测量.利用两个飞秒激光脉冲来分别激发和探测激发态的布居数,可以获得更短寿命的激发态粒子数随时间的演化规律.目前,利用激光光谱的方法进行 HCI 离子的超短能级寿命的高精度测量非常有限,只有极少数的实验中通过将飞秒级自由电子激光与 EBIT 结合.采用 XUV 波段泵浦-探测技术可以实现对更多 HCI 离子能级寿命的高精度测量.2015年,德国马克斯·普朗克核物理研究所提出了利用 PETRA III 同步辐射产生的高通量单色 X 射线共振激发 FLASH-EBIT 产生的高荷电 Fe²³⁺,实验装置如图4所示.在 EBIT 的轴向上利用一个沿离子束方向的漂移管产生的静电

势将离子囚禁在阱中.在 EBIT 侧壁 3 个不同角度还安装有高纯锗探测器,用于探测离子退激荧光.他们通过荧光探测,对铁的 K 壳空穴的辐射和俄歇过程进行研究^[80].中国科学院近代物理研究所在 CSRe 上已经加装了适用于前向发射极紫外荧光收集的光子探测系统,可在未来的 HCI 离子激光光谱研究中通过荧光探测进行离子能级信息的测量^[81].

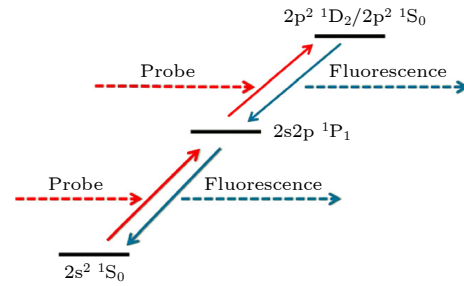


图3 类C离子 $1s^2 2s np \ ^1P_1$ ($n = 2-5$) 能级寿命的荧光测量方法示意图^[16]

Fig. 3. Schematic diagram of lifetime measurement for the $1s^2 2s np \ ^1P_1$ ($n = 2-5$) states in Be-like carbon ion by fluorescence method^[16].

3.3.2 离子探测

利用荧光光谱测量与质谱测量结合的方式可以大幅提高探测灵敏度,这种测量方式在原子短寿命能级高精度测量中已有应用.2014年,Träbert等^[5]提出利用泵浦-探测电离产物的方案测量 Fe¹⁶⁺离子能级寿命,其实实验原理如图5所示,LCLS上测量 EBIT 中 HCI 离子能级,离子被 X 射线泵浦光共振激发到待测能级后,第2束探测光脉冲进一步电离被激发的离子,产生 Fe¹⁷⁺离子并被引出离子

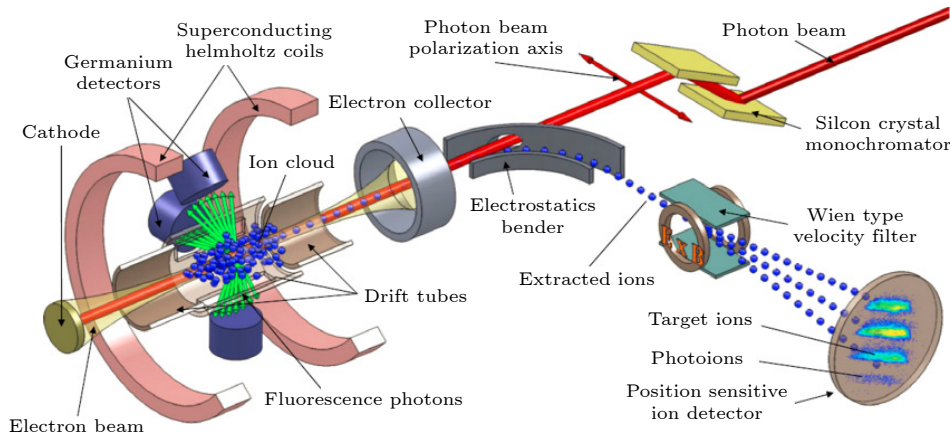


图4 在 FLASH-EBIT 上开展 HCI 光谱测量的实验装置示意图^[80]

Fig. 4. Schematic diagram of the experimental setup for HCI spectral measurement on FLASH-EBIT^[80].

阱, 通过测量不同荷质比离子的计数, 同步测量 Fe^{17+} 计数与激光脉冲延迟时间的曲线, 即可得到 Fe^{16+} 激发能级布居演化, 进而得到其能级寿命的衰减曲线. 在 PETRA III 同步辐射上的 HCI 光谱测量实验装置中 (图 4), 通过降低收集极板的电势可以将离子从阱内引出, EBIT 外安装有一个 90° 的静电能量速度选择器, 可以将不同荷质比的离子在空间上分开, 并被位置灵敏离子探测器记录, 从而实现光电离产物的高灵敏测量 [81].

由于离子靶的密度很低, 与气体靶中中性原子或分子的数量密度相比, 要小 10 个数量级, 要获得有效的荧光或者离子计数需要非常高的光子通量. 利用光子-离子共线束技术可以获得更大的光子-离子相互作用距离, 从而提高激发电离产物. Bizau 等 [29] 采用离子束与光束共线的方式在 ASTRID 储存环产生的同步辐射上开展了 HCI 离子光谱研究, 其实验装置如图 6 所示, 由 ECR 离子源产生的电荷态为 q 的离子经离子束线传输后与同步辐射光在 50 cm 长的距离上共线作用, 将

离子进一步电离至 $q+1$ 态, 再利用二极磁铁 M2 将同步辐射光电离产生的电荷态为 $q+1$ 的离子与目标离子进行空间分离, 再分别用粒子探测器和法拉第筒探测这两种离子的产额. 利用该方法, 他们实现了对类铍的 N^{3+} (光子能量范围 62—89 eV), O^{4+} (100—130 eV), 类硼的 N^{2+} (39—138 eV), O^{3+} (65—99 eV), F^{4+} (100—140 eV), 类碳的 F^{3+} (75—110 eV) 和 Ne^{4+} (110—170 eV) 的绝对光离截面的测量 [29].

3.3.3 阿秒吸收光谱测量

阿秒光脉冲可以提供超宽带的 XUV 光子, 已在原子内壳层电子结构研究方面开展了吸收光谱测量. 2018 年, Chew 等 [82] 利用光参量啁啾脉冲放大器产生 2 mJ 载波包络相位稳定的 $1.7 \mu\text{m}$ 飞秒驱动激光脉冲, 脉宽为 11 fs, 重复频率为 1 kHz. 如图 7 所示, 飞秒驱动激光被分成两束, 一束用于驱动气体靶产生极紫外阿秒脉冲, 另一束作为探测光在轮胎镜之后与阿秒脉冲共线传输作用在待测

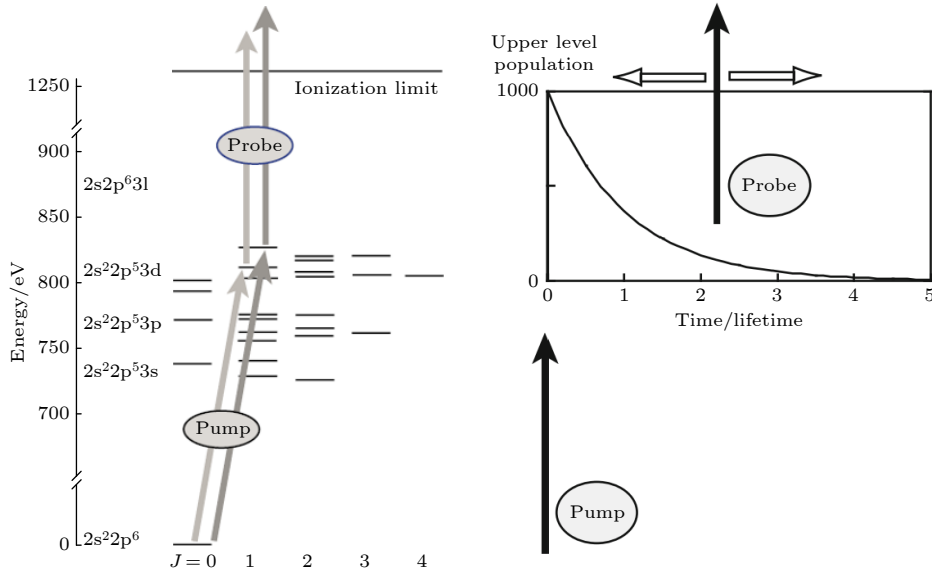


图 5 类 Ne 的 Fe^{16+} 离子泵浦-探测实验示意图 [5]

Fig. 5. Schematics of a pump-probe experiment on Ne-like iron ions (Fe^{16+}) [5].

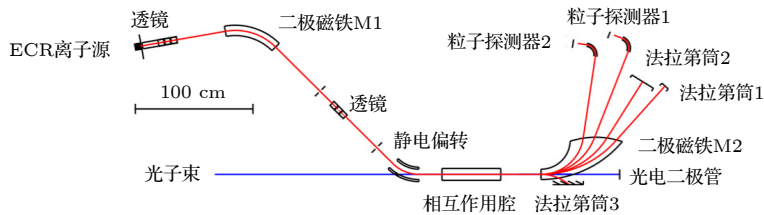


图 6 ASTRID 和 ECR 离子源结合装置示意图 [29]

Fig. 6. Schematic diagram of the ASTRID and ECR ion source combining device [29].

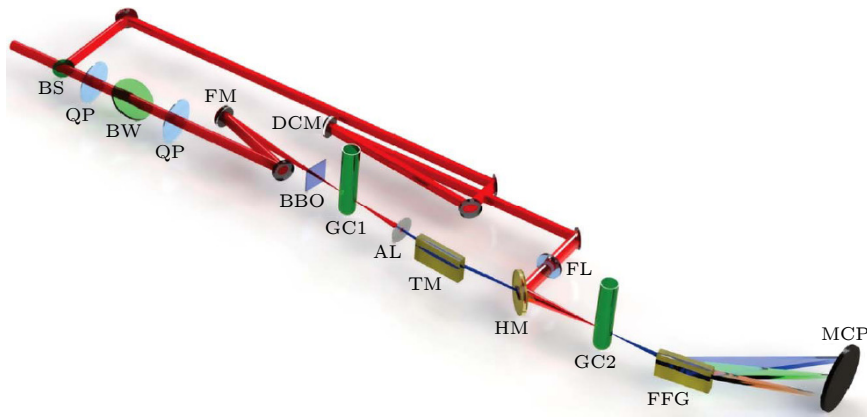


图 7 阿秒瞬态吸收实验装置示意图^[84]

Fig. 7. Schematic diagram of experimental setup for attosecond transient absorption^[84].

分子气体靶上. 通过改变 HHG 与驱动激光之间的延迟时间可以进行阿秒瞬态吸收光谱测量. 利用该方法, 他们测量了氙的 $2p^{-1} L_{2,3}$ 吸收边 (~ 250 eV) 处的阿秒瞬态吸收光谱, 证明了俄歇衰变和遂穿电离在多电子原子内壳层空穴驱动演化中的共同作用. 2010 年, Wang 等^[83] 首次用阿秒瞬态吸收光谱结合泵浦-探测技术证明了 Ar 原子自电离过程的时间尺度小于 10 fs. 借鉴阿秒瞬态吸收光谱测量技术对原子内壳层电子、分子结构的测量实验, 也可以将阿秒瞬态吸收光谱技术应用于 HCl 的跃迁能级及激发态寿命测量.

3.4 HCl 离子阿秒光谱测量方式

3.4.1 阿秒大科学装置上建设 EBIT 终端

FLASH-EBIT 的建成与实验研究为在阿秒光源等大型光源装置上开展 HCl 精密光谱测量提供了很好的参考. EBIT 系统相对简单、体积较小, 成本也较低, 可以方便地安装在阿秒光源等大科学装置上. 可以利用如图 8 所示的方法进行测量, 利用阿秒光束线将极紫外阿秒脉冲导入离子阱中心区域, 通过共振吸收激发 EBIT 中的 HCl 离子, 离子阱侧面装有多 X 射线荧光探测器, 用于同步监测荧光计数, 从而获得饱和激发条件. 由于 EBIT 产生的靶密度较低, 为获得有效计数, 需要高通量光源, 以提高荧光或离子产额. 因此, 在阿秒光源大科学装置上开展 HCl 离子激光光谱测量, 可首先考虑采用高重频的阿秒光脉冲与离子能级共振激发的方式实现. 而高重频飞秒激光的单脉冲能量相对较低, 例如在重频为 1 MHz 的束线上, 所设计的 XUV 光子能量范围为 20—60 eV, 光谱线宽

小于 50 meV, 利用该光源可以测量类铍的 C 离子等低 Z 离子的激发态寿命. 而当阿秒光脉冲的脉冲能量达到 1 μ J 以上时, 就有望开展阿秒 XUV-泵浦 XUV-探测的激光光谱实验, 获得 HCl 离子能级的阿秒级高精度时间分辨光谱.

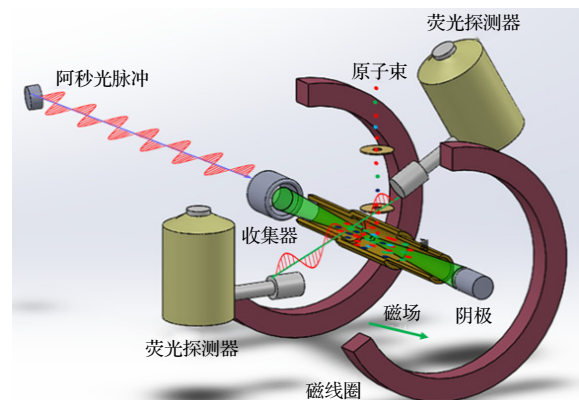


图 8 基于 EBIT 的 HCl 离子阿秒光谱测量装置示意图

Fig. 8. Schematic diagram of the experimental setup for attosecond spectroscopy of HCl on EBIT.

3.4.2 台式极紫外阿秒光源与重离子加速器冷却储存环结合

随着全固态高重频、高功率泵源技术发展, 未来易于获得台式高重频高通量阿秒脉冲, 由于这些 XUV 源体积紧凑、环境适应性好, 因此, 它们可以靠近储存环放置, 实现与 HIAF 等加速器冷却储存环的结合, 开展高 Z 的 HCl 离子能级测量. 尽管台式超快 XUV 光源的单脉冲能量有限, 但其重复频率最高可达 MHz, 且重离子束团以每秒数十万次频率在储存环中旋转, XUV 光束可以在加速器直线段与离子束长距离共线作用, 因此, 利用台

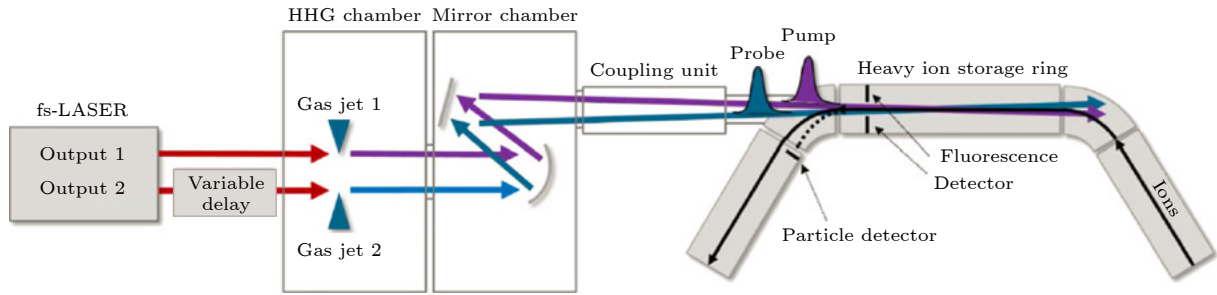


图 9 储存环上开展 HCI 离子 XUV-泵浦 XUV-探测的示意图^[16]

Fig. 9. Schematic diagram of a XUV-pump XUV-probe experiment on HCI at storage rings^[16].

面式超快 XUV 光源与重离子加速器冷却储存环结合有望在短测量时间内获得非常高的信噪比和统计数据. 利用 XUV 泵浦-探测方法实验测量 HCI 离子超短寿命激发态测量的实验装置^[16], 如图 9 所示. 一台飞秒激光器经分光后获得两束高精度同步的飞秒激光脉冲, 利用光学延迟线高精度控制两个脉冲之间的时间延迟, 这两个飞秒脉冲随后聚在两个单独的气体喷嘴产生两束 XUV 波段 HHG. 两束 XUV 光合束后, 再与存储环中的 HCI 束共线作用, 对 HCI 离子进行激发和电离. 通过调整泵浦-探测脉冲之间的延迟时间并同步记录电离信号, 即可获得飞秒级精度的 HCI 能级寿命信息^[16]. 此外, 重离子加速器冷却储存环能够提供周期表中几乎所有稳定元素的离子束, 并将离子加速至相对论能量, 利用多普勒频移效应, 能够将可测量的 HCI 能级跃迁从台面式 XUV 光源自身可提供的百 eV 量级推进至离子坐标系中的 keV 量级, 从而实现更宽范围内离子能级的激光光谱测量.

综上所述, 我们初步设计了一个可以开展 HCI 离子阿秒光谱测量的实验装置, 如图 10 所示. 将离子源或加速器产生的离子束与阿秒光源产生的极紫外光束在直线束线段进行共线相互作用. 阿秒光源可通过泵浦光分光后分别驱动两个气体靶产生两束波长可独立控制的极紫外光源, 再经空间延迟后进入离子束共线作用区. 共线作用区侧方安装 X 射线探测器用于饱和激发荧光测量, 离子束经过共线作用区后进入偏转磁铁将电离产生的不同电荷态离子在空间分开, 并被位置灵敏探测器记录, 从而得到阿秒光电离后离子产额信息. 通过改变两束阿秒光驱动延迟并同步测量退激荧光和离子产额计数等可以获得 HCI 离子能级及其寿命等信息. 对于极紫外波段 HCI 离子能级及寿命测量等, 目前仅有 FLASH 自由电子激光开展了相关

的工作. 尽管 FLASH 自由电子激光的脉冲能量可以达到 mJ 量级, 比阿秒光源的 μJ 高了 3 个量级, 但是典型脉冲宽度相差近 3 个量级. 因此, 两种光源典型峰值功率处于同等水平, 而阿秒光源的重复频率可以达到 MHz 量级, 比 FLASH 高 4 个量级, HCI 离子激光光谱测量的计数率也会比自由电子激光要大幅提高. 特别是, 阿秒光源的脉冲宽度可以达到 100 as 以内, 可以开展阿秒级的 HCI 离子能级寿命的精密测量. 利用阿秒光源的峰值功率、重复频率等典型参数对常见的 Fe^{23+} , Cu^{26+} , O^{5+} 等 HCI 离子的 XUV 激光激发谱进行估算. 根据已知的光激发截面、探测效率等估算, 当离子流强达到百 pA 量级、阿秒脉冲光强达到 100 nJ 以上等, 则每秒钟有望获得数十个荧光或光电离计数, 这对于光谱实验测量而言具有可行性. 因此, 未来利用阿秒光源开展 HCI 离子激光光谱测量具有可行性.

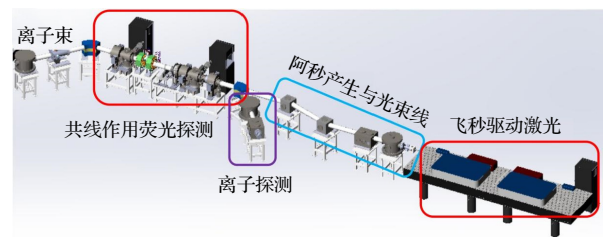


图 10 HCI 离子阿秒光谱测量装置示意图

Fig. 10. Schematic diagram of the setup for attosecond spectroscopy of HCI.

4 总结与展望

HCI 的光电离、光吸收等过程在天体物理等离子体中起着至关重要的作用, 在地面实验室进行 HCI 离子激光光谱测量对于天文观测提供高精度光谱数据库和建立天体演化模型等具有重要数据

支撑. 阿秒技术提供了一种极紫外甚至软 X 波段的超短脉冲, 为实验室开展 HCI 的光谱与超短能级寿命等提供了新的机遇. 本文总结了国际上利用同步辐射、自由电子激光等已开展的一些 HCI 离子光谱测量的实验方法、研究进展等, 简要介绍了国际上阿秒光源、离子靶等技术的发展现状. 目前将阿秒光源与 HCI 相结合进行离子能级及寿命测量的工作尚未有相关报道, 但通过与自由电子激光、同步辐射等光源上已有实验对比, 本文分析了将极紫外阿秒光源与 HCI 离子靶的技术结合开展 HCI 离子阿秒时间分辨精密光谱测量的可行性, 可以为离子能级结构计算、QED 理论高精度检验、天文光谱观测等研究提供新平台. 中国科学院近代物理研究所正在建设强流重离子加速器 (HIAF) 大科学装置等高能重离子储存环, 利用台面式极紫外阿秒激光束与离子束作用, 可利用多普勒效应开展最高可达 keV 范围的能级跃迁和超短能级寿命精密测量, 将极大地拓展 HCI 激光光谱研究范围.

参考文献

- [1] Beyer H F, Shevelko V P 2002 *Introduction to the Physics of Highly Charged Ions* (Boca Raton: CRC Press) pp1–2
- [2] Epp S W, López-Urrutia J R C, Simon M C, Baumann T, Brenner G, Ginzel R, Guerassimova N, Mäkel V, Mokler P H, Schmitt B L, Tawara H, Ullrich J 2010 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43** 194008
- [3] Mackel V, Klawitter R, Brenner G, Crespo Lopez-Urrutia J R, Ullrich J 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 143002
- [4] Huang Z K, Wen W Q, Xu X, Mahmood S, Wang S X, Wang H B, Dou L J, Khan N, Badnell N R, Preval S P, Schippers S, Xu T H, Yang Y, Yao K, Xu W Q, Chuai X Y, Zhu X L, Zhao D M, Mao L J, Ma X M, Li J, Mao R S, Yuan Y J, Wu B, Sheng L N, Yang J C, Xu H S, Zhu L F, Ma X 2018 *Astrophys. J. Suppl. Ser.* **235** 2
- [5] Träbert E 2014 *Appl. Phys. B* **114** 167
- [6] Al Shorman M M, Gharaibeh M F, Bizau J M, Cubaynes D, Guilbaud S, Hassan N E, Miron C, Nicolas C, Robert E, Sakho I, Blancard C, McLaughlin B M 2013 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **46** 195701
- [7] Champeaux J P, Bizau J M, Cubaynes D, Blancard C, Nahar S, Hitz D, Bruneau J, Wuilleumier F J 2003 *Astrophys. J. Suppl. Ser.* **148** 583
- [8] Liang G Y, Li F, Wang F L, Wu Y, Zhong J Y, Zhao G 2014 *Astrophys. J.* **783** 124
- [9] Indelicato P 2019 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **52** 232001
- [10] Nörtershäuser W 2011 *Hyperfine Interact.* **199** 131
- [11] Yang L S, Church D A 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 3860
- [12] Träbert E 2002 *Phys. Scr.* **T100** 88
- [13] Träbert E 2005 *Phys. Scr.* **T120** 56
- [14] Karn R K, Mishra C N, Ahmad N, Safvan C P, Nandi T 2015 *J. Atomic, Molecular, Condensate & Nano Phys.* **2** 127
- [15] Saito M, Chikaoka A, Majima T, Imai M, Tsuchida H, Haruyama Y 2018 *Nucl. Instrum. Meth. B* **414** 68
- [16] Rothhardt J, Bilal M, Beerwerth R, Volotka A V, Hilbert V, Stöhlker T, Fritzsche S, Limpert J 2019 *X-Ray Spectrom.* **49** 165
- [17] Franzke B, Geissel H, Münzenberg G 2008 *Mass Spectrom. Rev.* **27** 428
- [18] Martinson I 1989 *Rep. Prog. Phys.* **52** 157
- [19] Beyer H F, Gassner T, Trassinelli M, Heß R, Spillmann U, Banaś D, Blumenhagen K H, Bosch F, Brandau C, Chen W, Dimopoulou C, Förster E, Grisenti R E, Gumberidze A, Hagmann S, Hillenbrand P M, Indelicato P, Jagodzinski P, Kämpfer T, Kozhuharov C, Lestinsky M, Liesen D, Litvinov Y A, Loetzsch R, Manil B, Märtin R, Nolden F, Petridis N, Sanjari M S, Schulze K S, Schwemlein M, Simionovici A, Steck M, Stöhlker T, Szabo C I, Trotsenko S, Uschmann I, Weber G, Wehrhan O, Winckler N, Winters D F A, Winters N, Ziegler E 2015 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **48** 144010
- [20] Patterson B M, Sell J F, Ehrenreich T, Gearba M A, Brooke G M, Scoville J, Knize R J 2015 *Phys. Rev. A* **91** 012506
- [21] Schippers S, Kilcoyne A L D, Phaneuf R A, Muller A 2016 *Contemp Phys* **57** 215
- [22] Hangst J S, Berg-Sorensen K, Jessen P S, Kristensen M, Molmer K, Nielsen J S, Poulsen O, Schiffer J P, Shi P 1992 *Nucl. Instrum. Meth. B* **68** 17
- [23] Klaft I I, Borneis S, Engel T, Fricke B, Grieser R, Huber G, Kuhl T, Marx D, Neumann R, Schroder S, Seelig P, Volker L 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2425
- [24] Ullmann J, Anelkovic Z, Brandau C, Dax A, Geithner W, Geppert C, Gorges C, Hammen M, Hannen V, Kaufmann S, König K, Litvinov Y A, Lochmann M, Maaß B, Meisner J, Murböck T, Sánchez R, Schmidt M, Schmidt S, Steck M, Stöhlker T, Thompson R C, Trageser C, Vollbrecht J, Weinheimer C, Nörtershäuser W 2017 *Nat. Commun.* **8** 15484
- [25] Andjelkovic Z, Bharadia S, Sommer B, Vogel M, Nörtershäuser W 2010 *Hyperfine Interact.* **196** 81
- [26] Bundesanstalt P T <https://phys.org/news/2015-03-frozen-highly-ions-highest-precision.html> [2023-6-7]
- [27] Lyon I C, Peart B, West J B, Dolder K 1986 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **19** 4137
- [28] Covington A M, Aguilar A, Covington I R, Gharaibeh M F, Hinojosa G, Shirley C A, Phaneuf R A, Álvarez I, Cisneros C, Dominguez-Lopez I, Sant'Anna M M, Schlachter A S, McLaughlin B M, Dalgarno A 2002 *Phys. Rev. A* **66** 062710
- [29] Bizau J M, Champeaux J P, Cubaynes D, Wuilleumier F J, Folkmann F, Jacobsen T S, Penent F, Blancard C, Kjeldsen H 2005 *Astron. Astrophys.* **439** 387
- [30] Simon M C, Schwarz M, Epp S W, Beilmann C, Schmitt B L, Harman Z, Baumann T M, Mokler P H, Bernitt S, Ginzel R, Higgins S G, Keitel C H, Klawitter R, Kubiček K, Mäkel V, Ullrich J, López-Urrutia J R C 2010 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43** 065003
- [31] Rudolph J K, Bernitt S, Epp S W, Steinbrugge R, Beilmann C, Brown G V, Eberle S, Graf A, Harman Z, Hell N, Leutenegger M, Müller A, Schlage K, Wille H C, Yavas H, Ullrich J, Crespo Lopez-Urrutia J R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 103002
- [32] Schippers S, Riez S, Buhr T, Borovik A, Hellhund J, Holste K, Huber K, Schäfer H J, Schury D, Klumpp S, Mertens K, Martins M, Flesch R, Ulrich G, Rühl E, Jahnke T, Lower J, Metz D, Schmidt L P H, Schöffler M, Williams J B, Glaser L, Scholz F, Seltmann J, Viehhaus J, Dorn A, Wolf A, Ullrich J, Müller A 2014 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **47** 115602
- [33] Müller A, Bernhardt D, Borovik A, Buhr T, Hellhund J, Holste K, Kilcoyne A L D, Klumpp S, Martins M, Riez S,

- Seltmann J, Viefhaus J, Schippers S 2017 *Astrophys. J.* **836** 166
- [34] Müller A, Schippers S, Hellhund J, Kilcoyne A L D, Phaneuf R A, McLaughlin B M 2017 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **50** 085007
- [35] Schippers S, Martins M, Beerwerth R, Bari S, Holste K, Schubert K, Viefhaus J, Savin D W, Fritzsche S, Müller A 2017 *Astrophys. J.* **849** 5
- [36] Epp S W, Lopez-Urrutia J R, Brenner G, Mackel V, Mokler P H, Treusch R, Kuhlmann M, Yurkov M V, Feldhaus J, Schneider J R, Wellhofer M, Martins M, Wurth W, Ullrich J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 183001
- [37] Stutzki F, Gaida C, Gebhardt M, Jansen F, Wienke A, Zeitner U, Fuchs F, Jauregui C, Wandt D, Kracht D, Limpert J, Tümmernann A 2014 *Opt. Lett.* **39** 4671
- [38] Rothhardt J, Hädrich S, Demmler S, Krebs M, Winters D F A, Kühl T, Stöhlker T, Limpert J, Tümmernann A 2015 *Phys. Scr.* **T166** 014030
- [39] Kühl T, Rothhardt J https://www.hi-jena.de/en/research_areas/photon_particle_spectroscopy/laser_generated_radiation/x_ray_laser_spectroscopy/ [2023-6-7]
- [40] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, Chauvet A, Huppert M, Svoboda V, von Conta A, Tehlar A, Baykusheva D, Wolf J P, Wörner H J 2017 *Science* **355** 264
- [41] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, Tempea G, Spielmann C, Reider G A, Corkum P B, Krausz F 2001 *Science* **291** 1923
- [42] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
- [43] Teng H, He X K, Zhao K, Wei Z Y 2018 *Chin. Phys. B* **27** 074203
- [44] Klas R, Kirsche A, Gebhardt M, Buldt J, Stark H, Hädrich S, Rothhardt J, Limpert J 2021 *PhotoniX* **2** 4
- [45] Kühn S, Dumergue M, Kahaly S, Mondal S, Füle M, Csizmadia T, Farkas B, Major B, Várallyay Z, Cormier E, Kalashnikov M, Calegari F, Devetta M, Frassetto F, Månsson E, Poletto L, Stagira S, Vozzi C, Nisoli M, Rudawski P, Maclot S, Campi F, Wikmark H, Arnold C L, Heyl C M, Johnsson P, L' Huillier A, Lopez-Martens R, Haessler S, Bocoum M, Boehle F, Vernier A, Iaquaniello G, Skantzakis E, Papadakis N, Kalpouzos C, Tzallas P, Lépine F, Charalambidis D, Varjú K, Osvay K, Sansone G 2017 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **50** 132002
- [46] Meissl W, Simon M C, Crespo López-Urrutia J R, Tawara H, Ullrich J, Winter H P, Aumayr F 2006 *Rev. Sci. Instrum.* **77** 093303
- [47] Kozlov M G, Safronova M S, Crespo López-Urrutia J R, Schmidt P O 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 045005
- [48] Bouza S, Scheers J, Ryabtsev A, Schupp R, Behnke L, Shah C, Sheil J, Bayraktar M, López-Urrutia J R C, Ubachs W, Hoekstra R, Versolato O O 2020 *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **53** 195001
- [49] Grilo F, Shah C, Kühn S, Steinbrügge R, Fujii K, Marques J, Feng Gu M, Paulo Santos J, Crespo López-Urrutia J R, Amaro P 2021 *Astrophys. J.* **913** 140
- [50] Karlušić M, Kozubek R, Lebius H, Ban-d'Etat B, Wilhelm R A, Buljan M, Siketić Z, Scholz F, Meisch T, Jakšić M, Bernstorff S, Schleberger M, Šantić B 2015 *J. Phys. D Appl. Phys.* **48** 325304
- [51] Schmidt M, Hass M, Zschornack G, Rappaport M L, Heber O, Prygarin A, Shachar Y, Vaintraub S 2015 *AIP Conf. Proc.* **1640** 149
- [52] Xiao J, Zhao R, Jin X, Tu B, Yang Y, Di L, Hutton R, Zou Y 2013 *IPAC 2013: Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference* Shanghai, China, May 12–17, 2013 p434
- [53] Wang N X, Chen Y L, Yan H P, Jiang D K, Zhu X K, Guo P L, Wang F T, Ding L R, Shi J, Li W, Lu D, Zou Y M 2006 *Nucl. Sci. Tech.* **29** 169 (in Chinese) [王纳秀, 陈永林, 阎和平, 蒋迪奎, 朱希恺, 郭盘林, 王福堂, 丁立人, 施锦, 李炜, 路迪, 邹亚明 2006 *核技术* **29** 169]
- [54] Lu Q, Yan C L, Xu G Q, Fu N, Yang Y, Zou Y, Volotka A V, Xiao J, Nakamura N, Hutton R 2020 *Phys. Rev. A* **102** 042817
- [55] Liang S Y, Zhang T X, Guan H, Lu Q F, Xiao J, Chen S L, Huang Y, Zhang Y H, Li C B, Zou Y M, Li J G, Yan Z C, Derevianko A, Zhan M S, Shi T Y, Gao K L 2021 *Phys. Rev. A* **103** 022804
- [56] Liu X, Zhou X P, Wen W Q, Lu Q F, Yan C L, Xu G Q, Xiao J, Huang Z K, Wang H B, Chen D Y, Shao L, Yuan Y, Wang S X, Ma W L, Ma X W 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 033201 (in Chinese) [刘鑫, 周晓鹏, 汶伟强, 陆祺峰, 严成龙, 许帼芹, 肖君, 黄忠魁, 汪寒冰, 陈冬阳, 邵林, 袁洋, 汪书兴, 马万路, 马新文 2022 *物理学报* **71** 033201]
- [57] Liang S Y, Lu Q F, Wang X C, Yang Y, Yao K, Shen Y, Wei B, Xiao J, Chen S L, Zhou P P, Sun W, Zhang Y H, Huang Y, Guan H, Tong X, Li C B, Zou Y M, Shi T Y, Gao K L 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 093301
- [58] Zhao H W, Liu Z W, Zhang W, Zhang X Z, Yuan P, Guo X H, Zhang Z M, Wang Y F 2000 *At. Energy Sci. Technol.* **34** 282 (in Chinese) [赵红卫, 刘占稳, 张汶, 张雪珍, 袁平, 郭晓虹, 张子民, 王义芳 2000 *原子能科学技术* **34** 282]
- [59] Xia J W, Zhan W L, Wei B W, Yuan Y J, Zhao H W, Yang J C, Shi J, Sheng L N, Yang W Q, Mao L J 2016 *Chin. Sci. Bull.* **61** 11 (in Chinese) [夏佳文, 詹文龙, 魏宝文, 原有进, 赵红卫, 杨建成, 石健, 盛丽娜, 杨维青, 冒立军 2016 *科学通报* **61** 11]
- [60] Zhang Z M, Zhao H W, Zhang X Z, Guo X H, Li X X, Li J Y, Feng Y C, Wang H, Ma B H, Gao J Y, Cao Y, Sun L T, Ma L 2003 *Chin. Phys. C* **10** 914 (in Chinese) [张子民, 赵红卫, 张雪珍, 郭晓虹, 李锡霞, 李锦玉, 冯玉成, 王辉, 马保华, 高级元, 曹云, 孙良亭, 马雷 2003 *高等物理与核物理* **10** 914]
- [61] Leitner M A, Lyneis C M, Taylor C E, Abbott S R 2001 *Phys. Scr.* **T92** 171
- [62] Zhao H W, Sun L T, Zhang X Z, Zhang Z M, Guo X H, He W, Yuan P, Song M T, Li J Y, Feng Y C, Cao Y, Li X X, Zhan W L, Wei B W, Xie D Z 2006 *Rev. Sci. Instrum.* **77** 03A333
- [63] Zhao H W, Sun L T, Guo J W, Lu W, Xie D Z, Hitz D, Zhang X Z, Yang Y 2017 *Phys. Rev. Accel. Beams* **20** 094801
- [64] Steck M, Yuri A L 2020 *Prog. Part. Nucl. Phys.* **115** 103811
- [65] Tu X L, Chen X C, Zhang J T, Shuai P, Yue K, Xu X, Fu C Y, Zeng Q, Zhou X, Xing Y M, Wu J X, Mao R S, Mao L J, Fang K H, Sun Z Y, Wang M, Yang J C, Litvinov Y A, Blaum K, Zhang Y H, Yuan Y J, Ma X W, Zhou X H, Xu H S 2018 *Phys. Rev. C* **97** 014321
- [66] Wen W Q, Ma X, Bussmann M, Yuan Y J, Zhang D C, Winters D F A, Zhu X L, Li J, Liu H P, Zhao D M, Wang Z S, Mao R S, Zhao T C, Wu J X, Ma X M, Yan T L, Li G H, Yang X D, Liu Y, Yang J C, Xia J W, Xu H S 2014 *Nucl. Instrum. Meth. A* **736** 75
- [67] Wang H B, Wen W Q, Huang Z K, Zhang D C, Hai B, Bussmann M, Winters D, Zhao D M, Zhu X L, Li J, Li X N, Mao L J, Mao R S, Zhao T C, Yin D Y, Wu J X, Yang J C, Yuan Y J, Ma X 2018 *Nucl. Instrum. Meth. A* **908** 244
- [68] Wen W, Wang H, Huang Z, Zhang D, Chen D, Winters D,

- Klammes S, Kiefer D, Walther T, Litvinov S, Siebold M, Loeser M, Khan N, Zhao D, Zhu X, Li X, Li J, Zhao T, Mao R, Wu J, Yin D, Mao L, Yang J, Yuan Y, Bussmann M, Ma X 2019 *Hyperfine Interact.* **240** 45
- [69] Wang H, Wen W, Huang Z, Zhang D, Chen D, Zhao D, Zhu X, Winters D, Bussmann M, Ma X 2020 *X-Ray Spectrom.* **49** 138
- [70] Schröder S, Klein R, Boos N, Gerhard M, Grieser R, Huber G, Karafillidis A, Krieg M, Schmidt N, Kühl T, Neumann R, Balykin V, Grieser M, Habs D, Jaeschke E, Krämer D, Kristensen M, Music M, Petrich W, Schwalm D, Sigray P, Steck M, Wanner B, Wolf A 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 2901
- [71] Reinhardt S, Saathoff G, Buhr H, Carlson L A, Wolf A, Schwalm D, Karpuk S, Novotny C, Huber G, Zimmermann M, Holzwarth R, Udem T, Hänsch T W, Gwinner G 2007 *Nat. Phys.* **3** 861
- [72] Saathoff G, Karpuk S, Eisenbarth U, Huber G, Krohn S, Horta R M, Reinhardt S, Schwalm D, Wolf A, Gwinner G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 190403
- [73] Schramm U, Bussmann M, Habs D, Steck M, Kühl T, Beckerts K, Beller P, Franzke B, Nolden F, Saathoff G, Reinhardt S, Karpuk S 2006 *Hyperfine Interact.* **162** 181
- [74] Seelig P, Borneis S, Dax A, Engel T, Faber S, Gerlach M, Holbrow C, Huber G, Kühl T, Marx D, Meier K, Merz P, Quint W, Schmitt F, Tomaselli M, Völker L, Winter H, Würtz M, Beckert K, Franzke B, Nolden F, Reich H, Steck M, Winkler T 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4824
- [75] Stöhlker T, Litvinov Y A, Bräuning-Demian A, Lestinsky M, Herfurth F, Maier R, Prasuhn D, Schuch R, Steck M, for the S C 2014 *Hyperfine Interact.* **227** 45
- [76] Henning W F 2008 *Nucl. Phys. A* **805** 502C
- [77] Yang J C, Xia J W, Xiao G Q, Xu H S, Zhao H W, Zhou X H, Ma X W, He Y, Ma L Z, Gao D Q, Meng J, Xu Z, Mao R S, Zhang W, Wang Y Y, Sun L T, Yuan Y J, Yuan P, Zhan W L, Shi J, Chai W P, Yin D Y, Li P, Li J, Mao L J, Zhang J Q, Sheng L N 2013 *Nucl. Instrum. Meth. B* **317** 263
- [78] Yang J C, Zeng G, Xiao G Q, Peng L Q, Xia J W, Zhao H W, Xu H S, Zhou X H, Yuan Y J, Ma L Z, Gao D Q, Xu Z, Sun L T, Mao L J, He Y, Zhang J H, Hu Z G, Ma X W, Su Y W, Zhang W, Mao R S, Sheng L N, Shen G D, Wang S C 2020 *Chin. Sci. Bull.* **65** 8 (in Chinese) [杨建成, 曾钢, 肖国青, 彭良强, 夏佳文, 赵红卫, 徐珊珊, 周小红, 原有进, 马力祯, 高大庆, 许哲, 孙良亭, 冒立军, 何源, 张军辉, 胡正国, 马新文, 苏有武, 张玮, 毛瑞士, 蒙峻, 姚庆高, 盛丽娜, 申国栋, 王思成 2020 *科学通报* **65** 8]
- [79] Zhao H W, Xu H S, Xiao G Q, Xia J W, Yang J C, Zhou X H, Xu N, He Y, Ma X W, Yang L, Chen X R, Tang X D, Zhao Y T, Sun Z Y, Wang Z G, Hu Z G, Zhang J H, Ma L Z, Yuan Y J, Zhan W L 2020 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **50** 77 (in Chinese) [赵红卫, 徐珊珊, 肖国青, 夏佳文, 杨建成, 周小红, 许怒, 何源, 马新文, 杨磊, 陈旭荣, 唐晓东, 赵永涛, 孙志宇, 王志光, 胡正国, 张军辉, 马力祯, 原有进, 詹文龙 2020 *中国科学: 物理学 力学 天文学* **50** 77]
- [80] Steinbrügge R, Bernitt S, Epp S W, Rudolph J K, Beilmann C, Bekker H, Eberle S, Müller A, Versolato O O, Wille H C, Yavaş H, Ullrich J, Crespo López-Urrutia J R 2015 *Phys. Rev. A* **91** 032502
- [81] Chen D Y, Wang H B, Huang Z K, Zhao D M, Liu X, Zhou X P, Liu J L, Li C C, Yang J J, Zhang D C, Wen W Q, Ma X W 2022 *Nucl. Phys. Rev.* **39** 224 (in Chinese) [陈冬阳, 汪寒冰, 黄忠魁, 赵冬梅, 刘鑫, 周晓鹏, 刘建龙, 李长春, 杨金晶, 张大成, 汶伟强, 马新文 2022 *原子核物理评论* **39** 224]
- [82] Chew A, Douguet N, Cariker C, Li J, Lindroth E, Ren X, Yin Y, Argenti L, Hill W T, Chang Z 2018 *Phys. Rev. A* **97** 031407
- [83] Wang H, Chini M, Chen S, Zhang C H, He F, Cheng Y, Wu Y, Thumm U, Chang Z 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 143002
- [84] Wang X W, Chini M, Cheng Y, Wu Y, Chang Z H 2013 *Appl. Opt.* **52** 323

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Prospect for attosecond laser spectra of highly charged ions*Zhang Da-Cheng^{1)†} Ge Han-Xing¹⁾ Ba Yu-Lu¹⁾ Wen Wei-Qiang²⁾Zhang Yi¹⁾ Chen Dong-Yang²⁾ Wang Han-Bing²⁾ Ma Xin-Wen²⁾¹⁾ (*School of Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China*)²⁾ (*Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*)

(Received 14 June 2023; revised manuscript received 8 August 2023)

Abstract

The spectra of highly charged ions (HCIs) are of great significance for astronomical observation, astrophysical model establishment, and test of quantum electrodynamics (QED) theory. However, the transitions of HCI are mostly in the extreme ultraviolet or even X-ray range, the excitation spectra of HCI measured by laser spectroscopy in laboratory are very limited due to lack of the suitable light source. Up to now, only few experiments on the spectra of HCIs performed on synchrotron radiation, free electron laser or heavy-ions storage ring have been reported, which are summarized in this work. With the development of attosecond technology, several attosecond light source facilities have been built, such as extreme light infrastructure attosecond light pulse source (ELI-ALPS) and synergetic extreme condition user facility (SECUF), which have high photon energy and ultra-short pulse duration in the extreme ultraviolet and even soft X-ray range, providing new opportunities for laboratory research on HCI spectra and ultra short energy level lifetimes. Electron beam ion trap (EBIT), electron cyclotron resonance (ECR), and heavy-ion storage ring are usually used to generate ion target. But it is difficult to combine the attosecond laser source with large scale facility of HCI, for none of laboratories has both these two facilities now. Thus, two possible experimental schemes for attosecond spectrum of HCIs are proposed in this work. One scheme is that an EBIT can be designed as a terminal of attosecond laser facility, such as ELI-ALPS and SECUF, which can output different laser beams with high photon energy, ultra-short pulse duration or high flux. Another scheme is that a table-top HHG system pumped by an all-solid-state femtosecond laser or fiber femtosecond laser with high power can be combined with heavy-ion storage ring, such as ESR, CSRe, HIAF, and FAIR. Owing to high energy of ions in storage ring, the measurable energy levels of HCIs can even be extended to keV by the Doppler shift. Three different measurement methods: fluorescence detection, ion detection and attosecond absorption spectroscopy, can be used to obtain the HCI spectrum. Finally, a preliminary experimental setup for attosecond laser spectrum of HCI is proposed. The proposal on combining extreme ultraviolet attosecond light source with HCI target is discussed, and the feasibility of attosecond time-resolved precision spectrum for HCI is analyzed according to the typical parameters of attosecond light source and the known excitation cross-section and detection efficiency, which can provide a new platform for implementing ion level structure calculation, QED theory high-precision test and astronomical spectroscopic observation. It can be used to measure the ultra-short lifetime, low excitation cross-section ionic energy level, and even some transitions with large energy interval. We hope that this work can provide a reference for the experimental measuring of HCI spectrum and ion energy level lifetime in future.

Keywords: attosecond pulse, highly charged ion, precision laser spectrum, energy level structure**PACS:** 32.80.Fb, 32.80.-t, 42.62.Fi, 32.30.Rj**DOI:** 10.7498/aps.72.20230986

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. U2032136, U2241288).

† Corresponding author. E-mail: dch.zhang@xidian.edu.cn



高电荷态离子阿秒激光光谱研究展望

张大成 葛韩星 巴雨璐 汶伟强 张怡 陈冬阳 汪寒冰 马新文

Prospect for attosecond laser spectra of highly charged ions

Zhang Da-Cheng Ge Han-Xing Ba Yu-Lu Wen Wei-Qiang Zhang Yi Chen Dong-Yang Wang Han-Bing Ma Xin-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 193201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230986

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230986>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

利用三色组合脉冲激光获得孤立阿秒脉冲发射

Isolated attosecond pulse generation from helium atom irradiated by a three-color laser pulse

物理学报. 2022, 71(5): 054204 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211502>

低能高电荷态离子与Al表面作用产生的X射线

X-ray emission produced by interaction of slow highly charged ions with Al surfaces

物理学报. 2021, 70(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210757>

Co,Zn共掺铌酸锂电子结构和吸收光谱的第一性原理研究

First-principle calculation of electronic structures and absorption spectra of lithium niobate crystals doped with Co and Zn ions

物理学报. 2018, 67(18): 184209 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180735>

基于正交偏振场的双光学控制方案获得孤立阿秒脉冲产生

Isolated attosecond pulse generation from a double optical gating scheme based on orthogonal polarization field

物理学报. 2019, 68(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190847>

强激光等离子体相互作用驱动高次谐波与阿秒辐射研究进展

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

物理学报. 2021, 70(8): 084206 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339>

利用脉宽10 fs偏振控制脉冲获得孤立阿秒脉冲

Isolated attosecond pulse generation from polarization gating pulse with 10 fs duration

物理学报. 2019, 68(18): 184201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392>

专题: 阿秒物理

费曼路径积分强场动力学计算方法*

刘希望¹⁾ 张宏丹¹⁾ 贲帅¹⁾ 杨士栋²⁾ 任鑫²⁾ 宋晓红^{1)†} 杨玮枫^{1)3)‡}

1) (海南大学物理与光电工程学院, 海口 570228)

2) (汕头大学理学院, 汕头 515063)

3) (海南大学理论物理研究中心, 海口 570228)

(2023年3月25日收到; 2023年6月19日收到修改稿)

超快超强激光及阿秒测量技术的诞生和发展, 使人们在阿秒时间和原子空间尺度内观测及控制电子的运动成为可能. 日益精密的实验测量技术对理论计算方法的精确性提出了更高的要求, 如何使用理论模型从实验结果中分辨提取超快时空动力学时间和空间信息面临极大的挑战. 相比于精确求解含时薛定谔方程, 费曼路径积分强场动力学计算方法模型简单计算效率更高, 电子波包被看作具有不同初始状态的粒子, 通过解析粒子的运动状态便能厘清各种强场非线性物理现象的产生原因. 本文从强场近似理论模型出发介绍了强场动力学计算中的鞍点近似, 进一步详细介绍了库仑修正强场近似、基于轨迹的库仑修正强场近似与库仑量子轨迹强场近似等方法. 本综述旨在为强场动力学理论计算的研究提供相关方法与文献参考, 为进一步开展新型算法提供思路.

关键词: 强场近似, 鞍点近似, 库仑修正

PACS: 87.15.mn, 34.50.Fa, 32.80.Rm

DOI: 10.7498/aps.72.20230451

1 引言

现代量子力学始于2个不同的数学公式, 薛定谔的微分方程^[1]和海森伯的矩阵力学^[2]. 1948年, 费曼将最小作用量原理应用到量子力学中, 提出了一种完全崭新的量子力学表述-费曼路径积分方法^[3]. 不同于薛定谔方程从微分波动方程的角度, 费曼从路径积分和经典作用量的角度来处理问题, 将时间分割为许多小时间段, 以经典拉格朗日量作为相位的传播算子, 将所有到达 (x, t) 的路径贡献叠加便能得到波函数 $\varphi(x, t)$, 这已被证明满足薛定谔方程. 虽然看待问题的角度不同, 但是2个方程在数学上是等价的, 量子力学中的概率概念没有改变^[4].

该方法不仅为经典力学和量子力学架起了一座新的桥梁, 同时还为量子力学、场论和统计模式提供了一个统一的观点.

1960年, 世界上第一台红宝石激光器问世^[5], 激光飞速发展. 激光具有很高的光强, 与物质相互作用会产生各种非线性的物理现象. 这些非线性的物理现象与微观粒子结构性质具有很强的依赖性, 通过研究这些现象可以探索微观世界动力学过程, 同时也能得到微观粒子的结构信息. 但是这些非线性的物理现象也为理论研究提出了巨大的挑战^[6-8]. 显然, 经典动力学模型在微观世界已经不再适用, 量子力学的出现为研究微观世界提供了有力工具. 强场动力学的理论研究最早可以追溯到由Keldysh^[9], Faisal^[10]和Reiss^[11]提出的KFR理论, 该理论被

* 国家自然科学基金(批准号: 12074240, 12374260, 12204135, 12264013, 12204136)、海南省自然科学基金(批准号: 122CXTD504, 123MS002, 123QN179, 123QN180, 122QN217)和中德合作交流项目(批准号: M-0031)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: song_xiaohong@hainanu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: wfyang@hainanu.edu.cn

广泛用于解释强激光场下的实验现象. 在 KFR 理论的基础上, 研究者又考虑各种效应并发展了不同的理论模型, 这些模型统称为强场近似 (strong field approximation, SFA) 方法. 1966 年, Perelomov, Popov 和 Terent'ev^[12] 推导出电子任意束缚态的电离率—PPT 理论. 1986 年, Ammosov, Delone 和 Krainov^[13] 简化了 PPT 理论得到准静态绝热近似下的电子电离率—ADK 理论. 1994 年, Lewenstein 等^[14] 提出了基于费曼路径积分方法与拉格朗日最小作用量原理的全量子 SFA 理论, 且使用该理论研究了低频激光产生高次谐波. 这些开创性的理论为各种强场全量子动力学、半经典动力学与经典动力学计算方法提供了指导性意义.

求解全量子含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, TDSE)^[15,16] 可以获得精确的电子波包演化, 进而根据每个时刻的波函数求得电子的速度分布或能量分布, 但是由于其没有解析解, 只能借助计算机在每一时刻演化多维的微分方程得到数值解. 基于费曼路径积分的强场动力学方法将波函数用不同状态的粒子描述, 通过将不同粒子的贡献相干叠加来描述电子动力学过程. SFA 模型用平面波戈登-沃尔科夫态 (plane-wave Gordon-Volkov states) 来描述电子在连续态中的运动, 忽略了束缚势的影响. 正是由于 SFA 方法忽略了库仑势的作用, 其结果与实验和数值求解 TDSE 的结果很难在定量上完全一致. 为了克服 SFA 方法的局限, 研究了各种改进方案. 例如, 库仑-沃尔科夫近似 (Coulomb-Volkov approximation, CVA)^[17,18] 用库仑扭曲波替代了平面波, 该方法经常被用来研究光电子谱^[19,20]. 库仑修正强场近似 (Coulomb-corrected strong field approximation, CCSFA)^[21,22] 在 SFA 的作用量中引入微扰的库仑效应对相位进行了修正, 其电子轨迹并没有受到库仑势的影响. 基于轨迹的库仑修正强场近似 (trajectory-based Coulomb corrected strong field approximation, TCSFA)^[23,24], 将库仑势的影响引入作用量与电子连续态运动过程中. 库仑量子轨道强场近似 (Coulomb quantum-orbit strong field approximation, CQSFA)^[25,26] 是从费曼路径积分公式中使用时间演化算子的函数积分表示的方法, 求解连续态中完整的库仑运动方程, 忽略了隧穿过程中轨迹的库仑效应.

相较于 TDSE, 费曼路径积分强场动力学计算

方法模型简单计算效率更高, 同时由于电子被看作具有不同初始状态的粒子, 从而可以根据经典牛顿方程追溯每个粒子的运动轨迹, 通过解析粒子的运动状态便能发现各种物理现象的产生来源, 已在强场动力学计算中被广泛使用, 并用于分析强场物理中的各种新奇的实验现象^[27,28]. Salières 等^[29] 利用费曼路径积分方法复现了高次谐波谱 (high-order harmonic generation, HHG) 和阈上电离谱 (above-threshold ionization, ATI). Huismans 等^[30] 通过精确求解 TDSE 与 CCSFA 在亚激光周期时间尺度上观察到电子动力学的全息结构, 并且通过分析轨迹发现不同干涉结构源自不同轨道的相干. Li 等^[31] 基于费曼路径积分思想在经典轨道蒙特卡罗 (classical trajectory Monte Carlo, CTMC) 方法^[32] 基础上采用 ADK 理论, 并且赋予每条轨道相位信息发展出量子轨迹蒙特卡罗 (quantum-trajectory Monte Carlo, QTMC) 方法, 并研究了光电子谱中的阈上电离结构. Shvetsov-Shilovski 等^[33] 修正了 QTMC 方法的相位提出了半经典两步模型 (semiclassical two-step model, SCTS), 通过相位修正使得低能部分的计算更加精确. Song 等^[34] 在 QTMC 的基础上采用非绝热电离率发展了推广的量子轨迹蒙特卡罗方法 (improved quantum-trajectory Monte Carlo, IQTMC). Liu 等^[35,36] 采用分子 ADK 理论发展了分子量子轨迹蒙特卡罗方法, 提取了分子隧穿波包的相结构, 证明了隧道出口处的隧道波包的初始相位与初始横动量分布和分子核间距有关. Gong 等^[37] 通过实验与非绝热 QTMC 方法观测到氩原子从 4f 态与 5p 态的光电子发射存在大约 1.4×10^{-16} s 的费曼共振时间延迟. Song 等^[38] 通过相位-相位 (phase of phase) 技术结合非绝热 QTMC 方法证明了电子可能从连续态被捕获到束缚态并在该束缚态上停留一段时间再电离出去, 且该停留的时间大概是几百阿秒. 同年 Porat 等^[39] 通过实验结合 CCSFA 方法以阿秒精度重建了形成光电子全息图中光电子的电离时间, 通过将全息图两个臂的贡献解耦发现其电离时间差仅为几十阿秒. Trabert 等^[40] 在实验上观测到了氢分子隧穿电离中的 Wigner 时间延迟随电子发射与分子轴夹角的关系, 并且通过求解 TDSE, SCTS 与 SFA 模型验证了该结果的可靠性. Torlina 等^[41] 将势垒下的库仑势引入鞍点方程发展了解析的 R 矩阵 (analytical R-matrix, ARM) 理论, 并且

利用该方法重新定标了阿秒钟,证明了隧穿过程是瞬时的. Tong 等^[42]在 TCSFA 的基础上修正了鞍点方程提出自参照分子阿秒钟的新思路,成功测量了电子在二聚体分子共振态上的停留时间. Yan 和 Bauer^[24]在连续态充分考虑库仑势的作用,同时在势垒下的作用量也考虑了库仑势作用发现 TCSFA 和 TDSE 结果能定量符合.

可见费曼路径积分强场动力学计算方法已在强场物理中被广泛使用,很好地重复并解释实验现象,弥补了 TDSE 无法给出清晰物理图像的缺点,同时简化了计算模型使得计算的可行性大大提高.但是费曼路径积分强场动力学计算方法也存在一定的局限性与不足,费曼路径积分完全等同于薛定谔方程需要考虑所有的可能轨迹(不仅仅是经典轨迹,也包括量子轨迹).受限于计算能力,往往采用大量轨道模拟,由于轨道计算不够导致与真实结果可能存在一定偏差.同时,不同模型对于初始条件的选取也存在差异,导致不同模型对于相同的问题结果也会有所差别.例如,在 SFA 模型中不考虑库仑势的作用导致结果很难在定量上与实验符合,一般用于定性验证.在求解电子连续态的运动轨迹时,往往采用龙格-库塔法求解,但是在靠近核附近容易产生奇点,使得该轨迹无法求解.所以针对不同的问题需要选择合适的理论模型与计算方法.

本文将系统地介绍基于 KFR 理论的 SFA 计算方法.首先简要介绍 SFA 的基本理论,如偶极近似和鞍点近似等.然后重点介绍电子跃迁振幅的推导,详细介绍 CCSFA, TCSFA 和 CQSFA 方法的推导及应用.最后对费曼路径积分强场动力学计算方法的发展趋势进行展望.除特殊说明外,本文均使用原子单位,即 $\hbar = e = m_e = 1 \text{ a.u.}$

2 基本理论

2.1 偶极近似

在 SFA 模型中通常会考虑偶极近似,当激光场的波长 λ 远大于模型系统的距离和电子的漂移距离 d 时 ($\lambda \gg d = E_0/\omega^2$, E_0 与 ω 分别为激光的振幅和频率),矢势 $\mathbf{A}(r, t)$ 中的空间分量可以被忽略.即有 $\mathbf{A}(r, t) \rightarrow \mathbf{A}(t)$,这种近似可以使哈密顿函数更容易求解,同时在合理参数范围内对人们所感兴趣的物理现象没有明显的影响.磁场表示为 $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}(r, t)$,由于忽略了矢势的空间分量,那

么该磁场的值将为 0,也就是说该近似导致模型同时也忽略了磁场的作用.

2.2 长度规范与速度规范

考虑偶极近似下的激光与原子分子相互作用,通常用到两种规范^[43]:长度规范与速度规范.在数值求解 TDSE 时规范不变性已被证实,但是求解 TDSE 不能够分析这些物理现象.为了分析这些物理现象,研究者通常会采取不同的近似模型,其中最常用的就是 SFA 模型.但是看似非常合理的近似之后缺乏规范不变性,在 SFA 模型中一般情况下两种规范下会得到不同的结果,其中 Bauer 等^[44]详细讨论了 SFA 模型中的规范问题.

在单电子近似下,对于一个固定的原子核,除其中一个价电子外的所有电子作用都被当成一个有效的束缚势.此时这个电子与电场的耦合可以用哈密顿量来表示:

$$H_x(t) = H_0 + H_{Lx}(t), \quad (1)$$

其中,下标 ($x = L, V$) 代表不同的规范; $H_0 = -\frac{\nabla^2}{2m_e} + V(r)$ 表示无场下的哈密顿量 (m_e 为电子质量),束缚势 $V(r)$ 与选择何种规范无关.在偶极近似下,认为电场在空间中是均匀的,忽略了电场 $\mathbf{E}(r, t)$ 的空间依赖,因此 $\mathbf{E}(r, t) \rightarrow \mathbf{E}(t)$, $\mathbf{A}(r, t) \rightarrow \mathbf{A}(t)$.电场的相互作用项在不同规范下可以表示为

$$H_{Lx}(t) = \begin{cases} \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t), & x = L, \\ \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(t) + \frac{1}{2} \mathbf{A}(t)^2, & x = V. \end{cases} \quad (2)$$

其中, \mathbf{r} 与 \mathbf{p} 分别为电子的空间位置与速度.当电子运动到足够远且电场强度足够大时,此时电子所感受到的束缚势的作用远小于电场的作用,电子将被近似地看作在电场中运动的自由粒子,自由电子哈密顿量表示为

$$H_{Fx}(t) = -\frac{\nabla^2}{2m_e} + H_{Lx}(t). \quad (3)$$

(1) 式哈密顿量的含时演化算子 $U_x(t, t')$ 满足 Dyson 公式:

$$U_x(t, t') = U_0(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U_x(t, \tau) H_{Lx}(\tau) U_0(\tau, t'), \quad (4)$$

式中, $U_x(t, \tau)$ 为中间态演化算子, $U_0(t, t')$ 为无场哈密顿量 H_0 的演化算子.电子从电离能为 I_p 的束

缚态 $|\psi_0(t)\rangle = |0\rangle \exp(iI_p t)$ 到连续态 $|\psi_p(t)\rangle$ 的电离振幅写为

$$M_p = \lim_{t \rightarrow \infty, t' \rightarrow -\infty} \langle \psi_p(t) | U_x(t, t') | \psi_0(t') \rangle. \quad (5)$$

将 (1) 式代入 (5) 式, 由于初态和末态的正交性第一项为 0, 可以得到以下结果:

$$M_{px} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \psi_p(\tau) | U_x(t, \tau) H_{Lx}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle. \quad (6)$$

由于考虑 SFA, 即认为电子电离后将不受束缚势的影响, 此时电离的电子可以用沃尔科夫态来表示. 那么在任意时刻 $\langle \psi_p(\tau) | U_x(t, \tau) = \langle \psi_{px}^{(Vv)} |$, (6) 式可以写为

$$M_{px} = -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \psi_{px}^{(Vv)} | H_{Lx}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle. \quad (7)$$

这样即得到电子从初态电离到连续态的几率振幅, 其中连续态电子可以用沃尔科夫态表示为

$$\langle r | \psi_{px}^{(Vv)}(t) \rangle = \frac{e^{-iS_p(t)}}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \begin{cases} e^{i[p - e\mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{r}}, & x = L, \\ e^{i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}, & x = V. \end{cases} \quad (8)$$

2.3 鞍点近似

鞍点近似方法也被称为最速下降法^[45], 是一种积分近似的方法, 在数学及物理等领域有广泛应用. 例如求解非线性方程组^[46]、X 射线结构分析^[47]、机器学习^[48]和量子力学^[49]等. 求解类似如下复平面内的积分:

$$I(\lambda) = \int_C g(z) \exp[i\lambda w(z)] dz, \quad (9)$$

式中, C 为复 z 平面的固定曲线, 而 $g(z)$ 和 $w(z)$ 是包含 C 的某个区域 D 中的解析函数. 只要 $I(\lambda)$ 是收敛的, 积分在路径 C 的端点是允许存在奇点的. 对曲线 C 做一个变形使其通过 $w(z)$ 的鞍点 z_0 , 并且沿最速下降方向离开鞍点, 将 $\exp[i\lambda w(z)]$ 在该鞍点处展开, 由于 $w'(z_0) = 0$ 那么其得到的剖面在保留二次项的条件下近似为高斯函数:

$$\begin{aligned} & \exp[i\lambda w(z)] \\ &= \exp \left[i\lambda w(z_0) + \frac{1}{2} i\lambda w''(z_0)(z - z_0)^2 + \dots \right]. \end{aligned} \quad (10)$$

通过 (10) 式可以得出其误差为 $\mathcal{O}(1/\sqrt{\lambda})$, 所以当 λ 越大高次项对结果的贡献越小.

为了确定最速下降方向, 可以利用复数的极坐标形式:

$$w''(z_0) = |w''(z_0)| e^{i\alpha}, \quad z - z_0 = \rho e^{i\theta}, \quad (11)$$

其中, α 与 θ 为相角, ρ 为径向距离, 可以得到

$$\begin{aligned} w(z) &= w(z_0) + \frac{1}{2} w''(z_0)(z - z_0)^2 + \dots \\ &= w(z_0) + \frac{1}{2} |w''(z_0)| \rho^2 e^{i(\alpha + 2\theta)} + \dots \\ &= w(z_0) + \frac{1}{2} |w''(z_0)| \rho^2 [\cos(\alpha + 2\theta) \\ &\quad + i \sin(\alpha + 2\theta)] + \dots. \end{aligned} \quad (12)$$

由 (12) 式可知 $w(z)$ 的实部在 $\alpha + 2\theta = 2n\pi$ 时增长最快. 反之, 当 $\alpha + 2\theta = (2n + 1)\pi$ 时实部为最速下降. 因此可以通过由以下条件确定最速下降方向:

$$\theta = -\frac{\alpha}{2} + \frac{(2n + 1)\pi}{2}. \quad (13)$$

$g(z)$ 通常是缓慢变化的函数, 将 (10) 式代入 (9) 式可得:

$$\begin{aligned} I(\lambda) &\approx g(z_0) \exp[i\lambda w(z)] \\ &\times \int_C \exp \left[\frac{i\lambda w''(z_0)}{2} (z - z_0)^2 \right] dz. \end{aligned} \quad (14)$$

根据高斯积分再将所有鞍点求和可得:

$$I(\lambda) \approx \sum \sqrt{\frac{2\pi}{i\lambda w''(z_0)}} g(z_0) e^{i\lambda w(z_0)}, \quad (15)$$

其中, $\sqrt{\frac{2\pi}{i\lambda w''(z_0)}} g(z_0)$ 被称为前项因子. 在以经典作用量形式表述的量子力学问题时, 使用鞍点近似的优势是通过求解经典运动方程, 能够获取电子的运动轨迹, 使得可以追溯产生某种物理现象的来源. 上述推导过程是作用量为单变量的结果, 当作用量为多变量时其形式为^[50]

$$\begin{aligned} I(\lambda) &= \prod_{n=1}^N \left(\int_{-\infty}^{+\infty} dz \right) g(z_1, z_2, \dots, z_N) \\ &\times \exp[i\lambda w(z_1, z_2, \dots, z_N)]. \end{aligned} \quad (16)$$

因此, 这将会产生 N 个鞍点方程, 其形式如下:

$$\frac{\partial w}{\partial z_1} = 0, \quad \frac{\partial w}{\partial z_2} = 0, \quad \dots, \quad \frac{\partial w}{\partial z_N} = 0. \quad (17)$$

进行多变量泰勒展开和计算 N 个高斯积分可得

$$\begin{aligned} I(\lambda) &\approx \left(\frac{2\pi}{i\lambda} \right)^{\frac{N}{2}} \sum_s \{ \det[\mathbf{w}''(z_{1s}, z_{2s}, \dots, z_{Ns})] \}^{-\frac{1}{2}} \\ &\times F(z_{1s}, z_{2s}, \dots, z_{Ns}) \\ &\times \exp[i\lambda w(z_{1s}, z_{2s}, \dots, z_{Ns})], \end{aligned}$$

这里, $w''(z_{1s}, z_{2s}, \dots, z_{Ns})$ 代表多变量作用量的海森矩阵. 为了不失一般性, 需要考虑无限维的情况, 此时函数形式为

$$I(\lambda) = \int Dz F[z] \exp(i\lambda w[z]). \quad (18)$$

那么其鞍点方程写作 $\delta w[z_s] = 0$, 将作用量 $w[z]$ 泰勒展开到二阶项可以得到:

$$w[z(t)] \approx w[z_s(t)] + \frac{1}{2} \iint dt dt' \delta z(t) \frac{\delta^2 w}{\delta z(t) \delta z(t')} \delta z(t'), \quad (19)$$

这里, $\delta z_s(t) = z(t) - z_s(t)$. 将 (19) 式代入 (18) 式得到

$$I(\lambda) \approx \sum_s F[z_s] \exp(i\lambda w[z_s]) \times \int Dz \exp\left[i\frac{1}{2} \iint dt dt' \delta z(t) \frac{\delta^2 w}{\delta z(t) \delta z(t')} \delta z(t')\right].$$

同理对上式使用高斯积分可以得到

$$I(\lambda) \approx \sum_s F[z_s] \left[\det\left(\frac{\delta^2 w}{\delta z(t) \delta z(t')}\right) \right]^{-\frac{1}{2}} \times \exp(i\lambda w[z_s]). \quad (20)$$

2.3.1 数值计算鞍点方程

对于简单激光场, 可以很容易得到鞍点 t_s 的解析形式. 例如线偏振激光场 $E(t)$ 形式为 $E_z(t) = E_0 \sin(\omega t)$, 那么根据其矢势 $A(t) = -\int E(t) dt$ 可得

$$A_z(t) = A_0 \cos(\omega t), \quad (21)$$

其中 $A_0 = E_0/\omega$, E_0 为电场强度, ω 为电场频率. 将 (21) 式代入鞍点方程可得

$$\frac{1}{2}[p_z + A_0 \cos(\omega t_s)]^2 + \frac{1}{2}p_x^2 + \frac{1}{2}p_y^2 + I_p = 0. \quad (22)$$

其中, p_x, p_y, p_z 分别为电子三个方向的渐进动量. 将 (22) 式化简可得 t_s 有 2 个解:

$$t_s^{(1)} = \frac{1}{\omega} \arccos\left[\frac{-p_z \pm i\sqrt{2I_p + p_y^2 + p_x^2}}{A_0}\right],$$

$$t_s^{(2)} = \frac{2\pi}{\omega} - t_s^{(1)}. \quad (23)$$

由于 $\text{Im}[t_s] > 0$, 所以 (23) 式的 \pm 只取 $-$. 虽然 (23) 式很容易计算出其鞍点值, 但当电场形式为更复杂情况时, 例如矢势形式如下:

$$A_x(t) = A_0 \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \cos(\omega t),$$

$$A_y(t) = A_0 \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \sin(\omega t). \quad (24)$$

将 (24) 式代入鞍点方程很难给出鞍点的解析表达式. 由于无法给出鞍点的具体表达式, 做数值计算时可以考虑在一定区域内均匀地给出试探解, 记录误差在可接受范围内的解. 但是这将耗费大量时间, 而且得到的解精度各不相同, 需要更高精度就需要更加密集的试探解, 同时将带来更大的计算量.

2.3.2 遗传算法计算鞍点方程

为了解决这个问题, 一种基于遗传算法的 CCSFA 方法被提出 [51]. 令目标函数

$$f(t) = \frac{1}{2}[p_x + A_x(t)]^2 + \frac{1}{2}[p_y + A_y(t)]^2 + \frac{1}{2}p_z^2 + I_p,$$

当函数 $f(t) = 0$ 时, 满足鞍点方程. 遗传算法流程如图 1 所示, 具体可分 5 步来求解该方程.

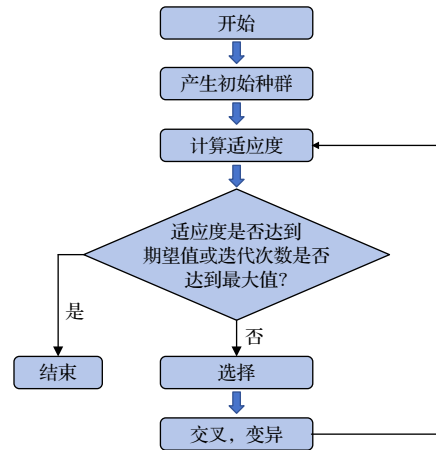


图 1 遗传算法流程图

Fig. 1. Flowchart of genetic algorithm.

步骤 1 产生初始种群. 这个过程开始于一组随机生成的个体样本, 其中每个样本都是问题的解决方案. 样本的特征是由一组基因决定的. 基因通常用 0 和 1 组成的二进制编码表示. 由于鞍点方程的解为复数 $t_s = t_r + it_i$, 所以为每个样本采用 2 个基因, 分别代表 t_s 的实部和虚部. 种群规模应该尽可能大, 因为初始个体越多, 进化出最佳结果的可能性就越大.

步骤 2 重构一个适应度函数 $H = 1/(|f(t)| + 0.01)$, 并计算每个个体的适应值, 当函数 $f(t) = 0$ 时, 其适应度最高 $H_{\max} = 100$. 选出其适应度满足给

定条件的样本, 例如当 $H > 99$, 此时 $|f(t)| < 10^{-4}$. 适应度函数评估种群中每个个体样本的适应度, 该个体被选择繁殖的概率是基于其适合度分数.

步骤 3 选择. 从当前的种群中, 根据其适应度分数, 提取作为父母的基因子集. 每个样本被选择概率记为 $p_i = H_i / \sum(H_i)$, 其对应着在 0—1 区间的长度. 随机生成 0—1 的随机数, 当该随机数落在该个体对应的区间时, 则选择该个体样本.

步骤 4 交叉、变异. 交叉就是对上一步所选择的个体样本两两配对, 将对应两个样本的同一个基因选择一段尾部编码进行互换. 这样交叉后既保留了上一代的主要性状, 同时又产生了新的特性. 变异是将产生的新个体在基因序列上随机选择一个二进制编码改变. 不需要每个个体都发生变异, 只需要选择很小一部分个体样本进行变异.

步骤 5 至此就产生了新一代的样本, 如果适应度达到期望或迭代次数达到最大值, 则停止产下一代, 否则就从步骤 2 开始重复整个过程.

遗传算法在本质上是非遍历性的, 所以其搜索解的效率很高. 但是变异概率、交叉概率和种群大小等参数对遗传算法的性能有重要影响. 非常小的突变率可能导致某些解的遗漏, 过高的突变率可能会导致好的解丢失并且算法很难收敛. 通常情况下能得到多于目标个数的解, 这时需要排除多余的解. 所以需要在一定范围内挑选一个适应度最大的解作为目标解.

2.3.3 牛顿迭代法计算鞍点方程

牛顿迭代法是一种在实数域或复数域上为方程找到近似解的方法, 常用来求方程根, 其最大优点是在方程 $f(x) = 0$ 的单根附近具有平方收敛性. 设 x_* 为 $f(x) = 0$ 的根, 在空间内选择任意 x_0 作为 x_* 的试探解, 过 $(x_0, f(x_0))$ 点作曲线 $y = f(x)$ 的切线 $L: y = f(x_0) + f'(x_0)(x - x_0)$, 则 L 与 x 轴交点 $x_1 = x_0 - f(x_0)/f'(x_0)$, 那么 x_1 为 x_* 的一次近似值. 如图 2 所示, 根据新得到的横坐标重复以上过程不断求切线与 x 轴的交点, 可以得到 $x_{n+1} = x_n - f(x_n)/f'(x_n)$ 为 x_* 的 $n+1$ 次近似值. 通过不断迭代 x_{n+1} , 将会越来越接近方程的根 x_* .

下面介绍用牛顿迭代法求解鞍点, 同理将鞍点方程以函数表示:

$$f(t) = \frac{1}{2}[p_x + A_x(t)]^2 + \frac{1}{2}[p_y + A_y(t)]^2 + \frac{1}{2}p_z^2 + I_p. \quad (25)$$

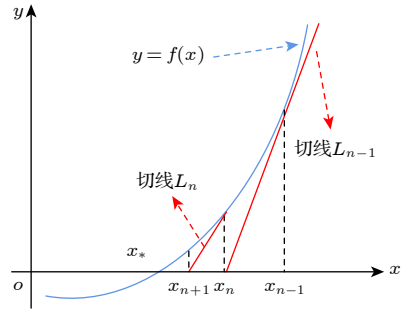


图 2 牛顿迭代法图示. 蓝色曲线为方程 $f(x)$ 的解, 红色直线为蓝色曲线在自变量 x 处的切线, x_* 为方程 $f(x) = 0$ 时需寻找的解

Fig. 2. Illustration of Newton's method. Blue curve represents value of function $f(x)$, and red lines represent tangent to blue curve at independent variable x , which is solution x_* when $f(x) = 0$.

对 (25) 式求导可得

$$f'(t) = [p_x + A_x(t)] \cdot [-E_x(t)] + [p_y + A_y(t)] \cdot [-E_y(t)]. \quad (26)$$

在复平面时间内均匀采点作为迭代的起始点, 通常一个时间周期 T 只需采样很少的点 (为了不漏解, 在实轴方向 $0 \rightarrow T$ 采样 5 个点, 虚轴方向 $0 \rightarrow 100$ a.u. 采样 2 个点). 因为 $f(t)$ 是连续的, 那么在零点周围存在一个区域, 只要初始值位于这个邻近区域内, 那么牛顿法必定收敛. 以采样点 $t^{(0)}$ 为例, 那么 t_s 的一次近似值为

$$t^{(1)} = t^{(0)} - f(t^{(0)})/f'(t^{(0)}). \quad (27)$$

以此类推, 可以得到

$$t^{(2)} = t^{(1)} - \frac{f(t^{(1)})}{f'(t^{(1)})}, \dots, t^{(n)} = t^{(n-1)} - \frac{f(t^{(n-1)})}{f'(t^{(n-1)})}. \quad (28)$$

收敛条件给为 $|f(t^{(n)})| < \varepsilon = 10^{-14}$, 其中 ε 为设置的微小量, 此时 $t^{(n)} \rightarrow t_s$.

以实例来说明该过程, 随机采样 3 个方向的速度为

$$\begin{aligned} p_x &= -1.99999843165272, \\ p_y &= -0.949039114484715, \\ p_z &= -0.589935354955732. \end{aligned}$$

矢量形式如下

$$\begin{aligned} A_x(t) &= \frac{A_0}{\sqrt{2}} \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \cos(\omega t), \\ A_y(t) &= \frac{A_0}{\sqrt{2}} \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \sin(\omega t). \end{aligned}$$

根据 $\mathbf{E}(t) = -\partial\mathbf{A}(t)/\partial t$ 得

$$E_x(t) = -\frac{A_0\omega}{2^{\frac{3}{2}}N} \sin\left(\frac{\omega t}{N}\right) \cos(\omega t) + \frac{A_0\omega}{\sqrt{2}} \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \sin(\omega t),$$

$$E_y(t) = -\frac{A_0\omega}{2^{\frac{3}{2}}N} \sin\left(\frac{\omega t}{N}\right) \sin(\omega t) - \frac{A_0\omega}{\sqrt{2}} \sin^2\left(\frac{\omega t}{2N}\right) \cos(\omega t).$$

选择 4 个初始试探解分别为 $(t_r = 20.1, t_i = 80.1)$, $(t_r = 40.1, t_i = 80.1)$, $(t_r = 60.1, t_i = 80.1)$, $(t_r = 120.1, t_i = 80.1)$. 计算结果如图 3 所示, 其收敛性呈指数型增长, 可以看到仅仅需要迭代不到 10 次, 其计算精度就达到了 10^{-15} .

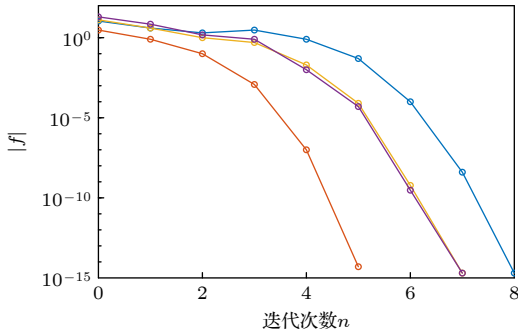


图 3 4 个样本的 $|f|$ 随迭代次数的变化. 蓝线、橙线、黄线和紫线分别代表初始试探解为 $(t_r = 20.1, t_i = 80.1)$ 、 $(t_r = 40.1, t_i = 80.1)$ 、 $(t_r = 60.1, t_i = 80.1)$ 和 $(t_r = 120.1, t_i = 80.1)$ 时, 随迭代次数增加函数值 $|f|$ 的变化.

Fig. 3. Variation of $|f|$ with the number of iterations n for four samples. The blue, orange, yellow, and purple lines represent the changes in function values $|f|$ with increasing iteration times when the initial trial solutions are $(t_r = 20.1, t_i = 80.1)$, $(t_r = 40.1, t_i = 80.1)$, $(t_r = 60.1, t_i = 80.1)$ and $(t_r = 120.1, t_i = 80.1)$, respectively.

同样地, 由于采样数一般会多于实际目标解的个数, 所以会有一些重复的解, 需要排除多余的相同解. 对比于遗传算法, 牛顿迭代法更适用于求解鞍点方程的近似解, 因为其不依赖于设置参数, 而且迭代是基于上次计算结果有方向的搜解, 通常情况下只需要迭代不到 10 次便能达到很高的精度.

2.3.4 鞍点方程修正

在 SFA 中, 作用量 S 通常忽略库仑势的影响, 考虑库仑势的情况下作用量为^[41]

$$S(\mathbf{p}, t) = S_V(\mathbf{p}, t) + S_C(\mathbf{p}, t) - I_p t_s, \quad (29)$$

其中, $S_V(\mathbf{p}, t) = \frac{1}{2} \int_t^{t_r} d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2$ 为电子只在激光场中累积的作用量, $S_C(\mathbf{p}, t) = \int_t^{t_r} d\tau V[\mathbf{r}(\tau)]$ 为电子受到原子核作用累积的作用量, t_r 为电场结束时刻. 鞍点方程满足等式:

$$\left. \frac{\partial S(\mathbf{p}, t)}{\partial t} \right|_{t_s} = \left. \frac{\partial S_V(\mathbf{p}, t)}{\partial t} \right|_{t_s} + \left. \frac{\partial S_C(\mathbf{p}, t)}{\partial t} \right|_{t_s} - I_p = 0, \quad (30)$$

其中鞍点方程的解 $t_s = t_r + i \cdot t_i$ 为一个复时间, 这样积分路径可以分为两项:

$$\int_{t_s}^{t_r} = \int_{t_s}^{t_r} + \int_{t_r}^{t_r}. \quad (31)$$

这里, 第 1 项为势垒下沿着虚时间轴的隧穿动力学过程 ($t_s \rightarrow t_r$); 第 2 项为沿着实时间轴连续态传播 ($t_r \rightarrow \infty$). 在鞍点近似方法中, $S_V(\mathbf{p}, t)$ 的被积函数在复数域为一个解析函数, 其积分与路径无关:

$$\left. \frac{\partial S_V(\mathbf{p}, t)}{\partial t} \right|_{t=t_s} = -\frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]^2. \quad (32)$$

然而, 当 \mathbf{r} 靠近 0 时, $V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] = z/r(\mathbf{p}, \tau)$ 不是一个解析函数, 其积分与路径有关, 所以 (30) 式的第 2 项不能像 (32) 式一样直接得到. 为了解决这个问题需要将积分路径分为两部分^[42]:

$$S_C(\mathbf{p}, t) = \int_t^\infty d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] = \int_{I_1} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] + \int_{I_2} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)]. \quad (33)$$

这里等式右边第 1 项代表在复平面内势垒下的隧穿动力学 ($t_s \rightarrow t_r$), 第 2 项代表隧穿后在连续态中的传播 ($t_r \rightarrow \infty$) (图 4). 这样 (30) 式中的库仑作用项可以写作

$$\left. \frac{\partial S_C(\mathbf{p}, t)}{\partial t} \right|_{t_s} = \left[\left. \frac{\partial}{\partial t} \int_{I_1} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] + \frac{\partial}{\partial t} \int_{I_2} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] \right] \Big|_{t_s}. \quad (34)$$

在复平面内, 积分路径 I_1 是沿平行于虚时间轴的方向从 t_i 到 0, 因此 t_r 是一个常数. 此时 (34) 式中的第 1 项可以写为

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_{I_1} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] \Big|_{t=t_s} = \lim_{\Delta\tau \rightarrow 0} \frac{\int_{t_i+\Delta\tau}^0 V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_r + i \cdot \tau)] d\tau - \int_{t_i}^0 V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_r + i \cdot \tau)] d\tau}{\Delta\tau} = -V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_s)], \quad (35)$$

积分路径 I_2 是沿 $t_i = 0$ 的实时间轴, 所以 (34) 式的第 2 项写为

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_{I_2} d\tau V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] \Big|_{t=t_s} = \lim_{\Delta\tau \rightarrow 0} \frac{\int_{t_i+\Delta\tau}^{\infty} V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] d\tau - \int_{t_i}^{\infty} V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, \tau)] d\tau}{\Delta\tau} = -V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_r)]. \quad (36)$$

将 (32) 式—(36) 式代入 (31) 式, 可得鞍点方程变为

$$\frac{1}{2}(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s))^2 + V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_s)] = -I_p - V[\mathbf{r}(\mathbf{p}, t_r)], \quad (37)$$

即在鞍点方程中考虑了势垒下库仑势的作用。

3 跃迁振幅

费曼路径积分思想是将波函数的贡献看作所有可能路径 (携带与路径相关的作用量) 的叠加, 使用鞍点近似的 SFA, CCSFA, TCSFA 与 CQSFA

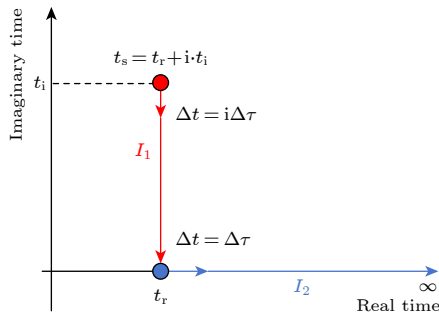


图 4 复平面的路径积分. I_1 描述了沿虚时间轴的积分, 步长为 $i\Delta\tau$. I_2 描述了沿实时间轴的积分, 步长为 $\Delta\tau$

Fig. 4. Path integral on complex plane. I_1 describes integration along imaginary time axis with a step size of $i\Delta\tau$, and I_2 describes the integration along real time axis with a step size of $\Delta\tau$.

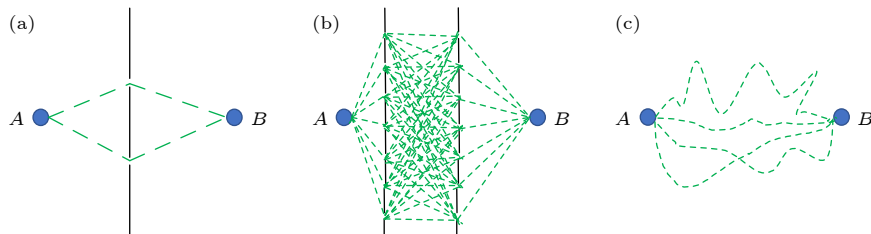


图 5 费曼路径积分思想示意图. A 与 B 分别为粒子的初始点与末点, 绿色虚线为粒子的可能路径 (a) 两个位置之间存在一个挡板双缝; (b) 两个位置间存在两个多缝挡板; (c) 两个位置存在无数个狭缝, 此时粒子可以从 A 点经历任意位置到达 B 点

Fig. 5. Schematic diagram of Feynman's path integral concept. A and B represent initial and final points of a particle, and the green dashed line represents the possible paths of particle: (a) There is a double-slit barrier between two positions; (b) there are multiple slit barriers between two positions; (c) there are infinite slits between two positions, and particle can reach point B from point A through any intermediate position.

均是以带作用量的轨迹来描述电子波函数. 费曼认为可以将有限时间分成无限多趋近于零的小时间段, 此时粒子在有限时间内传播可以看作粒子在每个时间段内传播的贡献总和. 如图 5(a) 所示, 粒子从 A 点到 B 点其中间存在一个双缝挡板时, 在 t_0 时刻粒子处于 A 点, t_1 时刻粒子到达挡板处, t_2 时刻粒子到达 B 点. 如果 $t_2 - t_1$ 与 $t_1 - t_0$ 均无穷小, 那么粒子从 A 点到达 B 点的概率为两条路径贡献总和. 当挡板数与狭缝数增多时路径也同时对应增多 (图 5(b)), 当挡板与狭缝无限多时可认为没有挡板存在, 此时粒子从 A 点到 B 点的概率为无限多不同位置到达 B 点的路径贡献总和. 当粒子从 A 点到达 B 点的时间为有限时, 可以将时间分为很多个小时时间段. 推广到无数条狭缝且该时间段内挡板数也无数个, 那么此时每条路径由折线变为了任意形状的曲线, 如图 5(c) 所示, 此时粒子从 A 点到 B 点的概率为空间中任意曲线路径的贡献总和.

从 A 点到 B 点的概率振幅来自于所有可能路径的贡献, 每一条路径的贡献幅度一样, 只有相位不同. 而其相位则与经典作用量 (S/\hbar) 有关, \hbar 为普朗克常数, (S/\hbar) 表明了对应于每条路径作用量 S 是量子化的. 对宏观尺度, 作用量子 \hbar 是个很小的量, 因此对每条路径作用量 S 都比 \hbar 大很多,

对该路径的相邻路径而言, 相位的变化非常巨大而使得这些路径贡献的几率振幅相互叠加抵消. 只有当这条路径与其临近路线的相位变化不大时 (对相位的变分为 0) 才不会相互抵消, 即经典粒子的路径. 可见路径积分方法结合最小作用量原理将量子现象过渡到了经典运动轨迹中, 在经典物理与量子物理之间架起了一座桥梁.

跃迁振幅描述了电子从一个状态跃迁到另一个状态的概率, 激光诱导的电离过程描述了电子在激光作用下从初态 $|\psi_0(t)\rangle$ 跃迁到连续态 $|\psi_{\mathbf{p}}(t)\rangle$ 的过程. 此时束缚势与外加电场耦合下的哈密顿量可以写为

$$H(t) = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r) + W(t), \quad (38)$$

式中, $W(t)$ 为电场作用算符, $V(r)$ 为势能算符, $\frac{1}{2}\nabla^2$ 为动能算符. 其对应的跃迁振幅为

$$M_{\mathbf{p}}(t_f, t_i) = \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U(t_f, t_i) | \psi_0(t_i) \rangle, \quad (39)$$

其中, $U(t_f, t_i)$ 为从时间 t_i 到时间 t_f 的时间演化算符. 同时考虑外加电场与原子的束缚势, 这很难得到 TDSE 的解析解, 所以将哈密顿量拆分为两项:

$$H_0(t) = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r), \quad (40)$$

$$H^{(\text{GV})}(t) = -\frac{1}{2}\nabla^2 + W(t). \quad (41)$$

这里, $H_0(t)$ 为束缚电子的哈密顿量, $H^{(\text{GV})}(t)$ 为连续态自由电子的哈密顿量, 对应的时间演化算符分别为 $U_0(t, t')$ 和 $U^{(\text{GV})}(t, t')$. 利用 Dyson 方程^[52], 可将时间演化算符写为如下积分形式:

$$U(t, t') = U_0(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U(t, \tau) W(\tau) U_0(\tau, t'), \quad (42)$$

$$U(t, t') = U^{(\text{GV})}(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau U^{(\text{GV})}(t, \tau) V(r) U_0(\tau, t'). \quad (43)$$

将 (42) 式代入 (39) 式, 考虑正交性 $\langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | \psi_0(t_i) \rangle$, 第 1 项的结果为 0, 那么可以得到跃迁振幅的积分形式:

$$M_{\mathbf{p}}(t_f, t_i) = -i \int_{t_i}^{t_f} d\tau \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U(t_f, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle. \quad (44)$$

将 (43) 式代入 (44) 式可将跃迁振幅分为 2 项:

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}(t_f, t_i) = & -i \int_{t_i}^{t_f} d\tau \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U^{(\text{GV})}(t_f, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle \\ & - \int_{t_i}^{t_f} d\tau \int_{\tau}^{t_f} dt \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U^{(\text{GV})}(t_f, \tau) V(r) U(t, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle, \end{aligned} \quad (45)$$

其中, 等式右边第 1 项为跃迁振幅的零阶项, 描述了直接电子从束缚态跃迁到连续态的概率. 在 SFA 中, 电子跃迁到连续态后被看作是自由电子不受到束缚势的影响 $\langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | \rightarrow \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(\text{GV})}(t_f) |$. 由于时间演化算子 $U^{(\text{GV})}(t, \tau) = \int d\mathbf{k} |\psi_{\mathbf{k}}^{(\text{GV})}(t)\rangle \langle \psi_{\mathbf{k}}^{(\text{GV})}(\tau) |$, 又考虑到波函数的正交性 $\langle \psi_{\mathbf{p}}^{(\text{GV})}(t_f) | \psi_{\mathbf{k}}^{(\text{GV})}(t_f) \rangle = \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k})$, 那么直接电子的跃迁振幅为

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)}(t_f, t_i) = -i \int_{t_i}^{t_f} d\tau \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U^{(\text{GV})}(t_f, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle = -i \int_{t_i}^{t_f} d\tau \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(\text{GV})}(\tau) | W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle. \quad (46)$$

(45) 式的第 2 项描述了电子再散射过程, 由积分等式 $\int_{t_i}^{t_f} d\tau \int_{\tau}^{t_f} dt = \int_{t_i}^{t_f} dt \int_{t_i}^t d\tau$, 再散射过程的跃迁振幅可写为

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(1)}(t_f, t_i) = & - \int_{t_i}^{t_f} d\tau \int_{\tau}^{t_f} dt \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U^{(\text{GV})}(t_f, \tau) V(r) U(t, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle \\ = & - \int_{t_i}^{t_f} dt \langle \psi_{\mathbf{p}}(t_f) | U^{(\text{GV})}(t_f, \tau) \int_{t_i}^t dt V(r) U(t, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle \\ = & - \int_{t_i}^{t_f} dt \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(\text{GV})}(t) | \int_{t_i}^t dt V(r) U(t, \tau) W(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle. \end{aligned} \quad (47)$$

3.1 积分法计算跃迁振幅

从 (46) 式与 (47) 式可知直接电子与散射电子具有不同的跃迁振幅, 光电子动量谱 $\omega(\mathbf{p})$ 由跃迁振幅模的平方给出, 通常不考虑电子返回再散射过程时, 只需要计算跃迁振幅的零阶项. 而且在不考

虑库仑势的情况下, 连续态电子被看作自由电子, 其在电场中的振荡速度为 $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$. 对于给定的末动量 \mathbf{p} , 考虑在长度规范下 $W(\tau) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau)$, 同时将其与沃尔科夫平面波代入 (46) 式可得到电子末动量为 \mathbf{p} 时的概率为

$$\begin{aligned} \omega(\mathbf{p}) &= \left| -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \psi_{\mathbf{p}}^{(\text{GV})}(\tau) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle \right|^2 = \left| -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau (\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) | \psi_0(\tau)) e^{-iS(\tau)} \right|^2 \\ &= \left| -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \int d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}} e^{-i\mathbf{A}(\tau) \cdot \mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) e^{-iS(\tau)} \right|^2. \end{aligned} \quad (48)$$

这里, 作用量 $S(\tau) = \int_{-\infty}^{\tau} \left[\frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2 + I_p \right] dt$. 对于三维空间, (48) 式为一个四重积分, 根据 (48) 式的形式空间积分可以采用傅里叶变换形式, 对于一个特定时间 τ , 令 $F(\mathbf{r}, \tau) = e^{-i\mathbf{A}(\tau) \cdot \mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau)$, 则有

$$\int d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}} e^{-i\mathbf{A}(\tau) \cdot \mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) = \int F(\mathbf{r}, \tau) e^{-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} = \mathcal{F}[F(\mathbf{r}, \tau)]. \quad (49)$$

将 (49) 式代入 (48) 式可得

$$\omega(\mathbf{p}) = \left| -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \mathcal{F}[F(\mathbf{r}, \tau)] e^{-iS(\tau)} \right|^2, \quad (50)$$

其中, $\mathcal{F}[F(\mathbf{r}, \tau)]$ 为 $F(\mathbf{r}, \tau)$ 的傅里叶变换, 这样将每个时间下的跃迁振幅求和平方, 便能得到光电子动量谱^[53].

3.2 微分法计算跃迁振幅

由 (50) 式可知 $F(\mathbf{r}, \tau)$ 是含时变化的, 所以无法得到其解析形式, 因此在每个时间步长都需要数值计算快速傅里叶变换. 另一种方法是从动量波函数出发, 通过对其动量波函数求微分便能得到每一时刻跃迁振幅的解析表达式^[54], $\omega(\mathbf{p})$ 将变成一重积分, 令 $\mathbf{q} = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$, 那么 (46) 式可以重写为

$$\begin{aligned} \omega(\mathbf{p}) &= \left| -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \left[\int e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) d\mathbf{r} \right] \cdot \mathbf{E}(\tau) e^{-iS(\tau)} \right|^2 \\ &= \left| \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \left[\int d\mathbf{r} \frac{d}{d\mathbf{q}} (e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) \right] \cdot \mathbf{E}(\tau) e^{-iS(\tau)} \right|^2 \\ &= \left| \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \frac{d}{d\mathbf{q}} \left[\int (e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) d\mathbf{r} \right] \cdot \mathbf{E}(\tau) e^{-iS(\tau)} \right|^2 \\ &= \left| \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \frac{d}{d\mathbf{q}} [\psi_0(\mathbf{q})] \cdot \mathbf{E}(\tau) e^{-iS(\tau)} \right|^2. \end{aligned} \quad (51)$$

这里, $\psi_0(\mathbf{q})$ 是 $\psi_0(\mathbf{r})$ 的傅里叶变换, 表示自变量为 \mathbf{q} 的动量空间波函数^[55], 其解析式为

$$\psi_0(\mathbf{q}) = 4\pi C_{\nu l m} (\pm 1)^l Y_{l m}(\mathbf{q}) \frac{(2\kappa)^\nu \Gamma(\nu + 1)}{(q^2 + \kappa^2)^{\nu+1}}. \quad (52)$$

这里, $\kappa = \sqrt{2I_p}$ 为束缚电子的特征动量, $C_{\nu l m}$ 为归一化系数, $Y_{l m}$ 为球谐函数, ν 为主量子数, l 为

角量子数, m 为磁量子数. 对于氢原子 1s 态 ($\nu = 1$, $l = 0$, $m = 0$), 将其代入 (52) 式可得

$$\psi_0(\mathbf{q}) = \frac{4C_{\nu l m} \sqrt{\pi} \kappa}{(q^2 + \kappa^2)^2}. \quad (53)$$

对于其他量子态的动量空间波函数, 可以将其对应的量子数代入 (52) 式得到其解析的波函数. 实际

计算时间的积分中, 通常取电场开始时间 0 与电场结束时间 t_f 作为积分的上下限, 将 (53) 式代入 (51) 式可得

$$\omega(\mathbf{p}) = \left| 2^{\frac{7}{2}} (2I_p)^{\frac{5}{4}} \int_0^{t_f} d\tau \frac{\mathbf{q} \cdot \mathbf{E}(\tau)}{\pi(\mathbf{q}^2 + 2I_p)^3} \cdot e^{-iS(\tau)} \right|^2. \quad (54)$$

3.3 利用鞍点近似方法计算跃迁振幅

跃迁振幅描述了电子从束缚态跃迁到连续态的概率, 通过使用鞍点近似将其简化为许多轨迹的相干叠加, 这样可以很清晰地分析不同时间窗口所出射电子的相干特性^[56]. 作用量 $S(t)$ 作为一个指数, 是关于时间 t 的高速振荡函数, 可以利用鞍点近似方法来计算该时间积分^[57], 从而用电子轨道的形式来描述时空动力学. 这不仅使计算更加简单, 而且可以提供清晰的电子动力学过程物理图像. (46) 式描述了直接电离电子的跃迁振幅, 对其使用鞍点近似可得

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(0)} &= -i \int_0^{t_f} d\tau \left[\int e^{-i[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)] \cdot \mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) d\mathbf{r} \right] e^{-iS(\tau)} \\ &= -i \int_0^{t_f} d\tau \left[\int -i \frac{\partial e^{-i[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)] \cdot \mathbf{r}}}{\partial \tau} \cdot \psi_0(\mathbf{r}, \tau) d\mathbf{r} \right] e^{-iS(\tau)} = -(2\pi)^{\frac{3}{2}} \int_0^{t_f} \frac{\partial \psi_0[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)]}{\partial \tau} e^{-iS(\tau)} d\tau. \end{aligned} \quad (57)$$

(57) 式用到了 $[\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) + i\partial/\partial\tau] e^{-i[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)] \cdot \mathbf{r}} = 0$ 以及动量波函数 $\psi_0(\mathbf{q})$, 其为空间波函数的傅里叶变换

$$\psi_0(\mathbf{q}) = (2\pi)^{\frac{3}{2}} \int e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} \cdot \psi_0(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (58)$$

对 (57) 式分部积分可得

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{p}}^{(0)} &= i \int_0^{t_f} \psi_0[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)] \cdot S'(\tau) e^{-iS(\tau)} d\tau \\ &\quad - \psi_0[\mathbf{p}+\mathbf{A}(\tau)] e^{-iS(t)} \Big|_0^{t_f}. \end{aligned} \quad (59)$$

对于零程势, 基态空间波函数为

$$\psi_0(\mathbf{r}) = \left(\frac{\kappa}{2\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{\exp(-\kappa r)}{r}, \quad (60)$$

傅里叶变换形式 (动量波函数) 为

$$\psi_0(\mathbf{q}) = \frac{\kappa^{1/2}}{\pi(\mathbf{q}^2 + \kappa^2)} = \frac{\kappa^{1/2}}{2\pi S'}. \quad (61)$$

由 (53) 式可知, 对于库仑势的动量波函数可以表示为

$$\begin{aligned} &M_{\mathbf{p}}^{(0)}(t_f, t_i) \\ &= -i \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\tau) | \psi_0(\tau) \rangle e^{-iS(\tau)} \\ &= -i \sum_s \left\{ \frac{2\pi i}{E(t_s) \cdot [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]} \right\}^{\frac{1}{2}} \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \\ &\quad \times \mathbf{E}(t_s) | \psi_0(\tau) \rangle e^{-iS(t_s)}. \end{aligned} \quad (55)$$

将所有鞍点的贡献求和便能计算出电子在渐进动量为 \mathbf{p} 时的跃迁振幅, 但是注意到其鞍点方程为

$$\frac{\partial S(t)}{\partial t} = \frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + I_p = 0. \quad (56)$$

因此在满足鞍点条件下等式 $\mathbf{q}^2 + 2I_p = 0$ 成立. 那么根据 (54) 式可知, $\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_s) | \psi_0(\tau) \rangle$ 在鞍点处是一个奇点, 以至于鞍点近似方法此时不再适用. 为了解决这个问题使鞍点等式成立, 考虑将 $M_{\mathbf{p}}^{(0)}(t_f, t_i)$ 做变形, 实际计算中取外加电场结束时间 t_f 作为积分上限, 电场开始时间 0 为积分的下限. 将符号计算展开为积分形式那么有

$$\psi_0(\mathbf{q}) = \frac{2^{3/2} \kappa^{5/2}}{\pi(\mathbf{q}^2 + \kappa^2)^2} = \frac{\kappa^{5/2}}{\sqrt{2\pi} S'^2}. \quad (62)$$

很显然, 当选择零程势时, 将波函数代入 (59) 式, 其分母上的 S' 可以被消掉. 但选择库仑势时, 分母上的 S' 还保留着, 这将导致奇异点的发生, 将 (62) 式代入 (59) 式得

$$M_{\mathbf{p}}^{(0)} = \frac{\sqrt{2}}{\pi} (2I_p)^{\frac{5}{4}} \left(\mathcal{L} - \frac{\exp(-iS)}{2S'^2} \Big|_0^{t_f} \right), \quad (63)$$

其中

$$\mathcal{L} = \frac{i}{2} \int_0^{t_f} \frac{\exp(-iS)}{S'} d\tau. \quad (64)$$

根据柯西积分定理, 沿着实轴的积分 $0 \leq t \leq t_f$ 等于从 0 到 $a+i\infty$ 的曲线积分, 复数平面 C_s 的曲线积分, 从 $b+i\infty$ 到 t_f 曲线积分这三部分之和. 这里 $a(b)$ 为连接曲线 C_s 的左端点 (右端点) 的实数. 为了避免在 t_s 发生奇点, 曲线 C_s 通过点 $t_s - i\epsilon, \epsilon \rightarrow 0^+$. 这时 (64) 式分裂成 2 项:

$$\mathcal{L} \approx \mathcal{L}_{0,t_f} + \sum_s \mathcal{L}_s. \quad (65)$$

对 (65) 式的第 1 项使用分部积分可得

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{0,t_f} &= \frac{i}{2} \int_0^{t_f} dt \frac{\exp(-iS)}{S'} = \frac{\exp(-iS)}{2S'^2} \Big|_0^{t_f} \\ &+ \int_0^{t_f} dt \frac{S''}{S'^3} \exp(-iS). \end{aligned} \quad (66)$$

相对于第 1 项, 第 2 项是关于 S' 的逆高阶项, 所以可以忽略不计, 因此 (66) 式中的主要贡献来自实轴上的 2 个点 $t=0$ 与 $t=t_f$, 发现该项可以与 (63) 式的第 2 项抵消, 所以跃迁振幅 $M_p^{(0)}$ 的贡献可以记为曲线 C_s 的积分. 由于 $S'=0$ 被积函数是奇异的, 分别将 S 与 S' 在鞍点处展开可得

$$S \approx S_s + \frac{(t-t_s)^2}{2} S_s'', \quad S' \approx (t-t_s) S_s''. \quad (67)$$

将其代入 \mathcal{L}_s 可得

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_s &= \frac{i}{2} \int_{C_s} dt \frac{\exp(-iS)}{S'} = \frac{i}{2} S_s''^{-1} \exp(-iS_s) \\ &\times \int_{C_s} \frac{dt}{t-t_s} \exp \left[\frac{i(t-t_s)^2}{2} S_s'' \right]. \end{aligned} \quad (68)$$

对于 $iS_s'' = -|S_s''| \exp(i\alpha)$, 鞍点方法最速下降方向通过 $t-t_s = \pm |t-t_s| \exp\left(-\frac{i\alpha}{2}\right) = \rho \exp\left(-\frac{i\alpha}{2}\right)$, $-\infty < \rho < \infty$ 定义, 所以有

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_s &= \frac{i}{2} S_s''^{-1} \exp(-iS_s) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\rho}{\rho - i\epsilon} \\ &\times \exp\left(-\frac{|S_s''| \rho^2}{2}\right) = -\frac{\pi \exp(-iS_s)}{2 S_s''}. \end{aligned} \quad (69)$$

结合 (63) 式—(69) 式, 可以得到对于当束缚势为库仑势时, 其跃迁振幅写为

$$M_p^{(0)} = -\frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}}}{\sqrt{2}} \sum_s \frac{\exp(-iS_s)}{S_s''}. \quad (70)$$

4 库仑修正强场近似

众所周知, SFA 可以对复轨迹进行有效的解释, 也称为量子轨道 [58,59]. 复轨迹法的实质是: 由于不考虑库仑势, 对于每一个最终光电子动量 \mathbf{p} 可以找到一个或几个复电子轨迹 $\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t)$ 满足经典的激光场中电子运动方程:

$$\ddot{\mathbf{r}}_0(\mathbf{p}, t) = \ddot{\mathbf{v}}_0 = -\mathbf{E}(t). \quad (71)$$

初始与边界条件有

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_0^2(\mathbf{p}, t=t_s) &= -2I_p, \quad \text{Re}[\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_s)] = 0, \\ \mathbf{v}_0(t \rightarrow +\infty) &= \mathbf{p} + \mathbf{A}(t \rightarrow +\infty) = \mathbf{p}. \end{aligned} \quad (72)$$

(72) 式前 2 项为初始条件, 表明电子处于原点 (也就是原子的位置) 其动能等于束缚能, 第 3 项为边界条件表明电子以动量 \mathbf{p} 的状态打在探测器上. 虽然这个轨道满足经典运动方程, 但是其轨道为复数, 说明电子从基态发生隧穿或多光子电离是量子效应. 因为初始电子能量为负, 那么其初始时间 t_s 也是复数. 当时间 $t = t_0 = \text{Re}[t_s]$ 时, 表明电子处于经典作用区域, 此时隧穿出口 $\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_0)$ 为一个实数. 根据之前的初始条件可得

$$\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_0) = \int_{t_s}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)] dt + \mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_s). \quad (73)$$

由于 $\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_s)$ 为一个纯虚数, 可得

$$\begin{aligned} \mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_0) &= \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)] dt \right] \\ &= \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_0} \mathbf{A}(t) dt \right], \\ \mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t=t_s) &= -\text{Im} \left[\int_{t_s}^{t_0} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)] dt \right]. \end{aligned} \quad (74)$$

根据之前的推导 (70) 式, SFA 电子的跃迁振幅为

$$M_p^{\text{SFA}} = -\frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}}}{\sqrt{2}} \sum_s \frac{\exp(-iS_s)}{S_s''}. \quad (75)$$

其中, $S_s = \int_{t_s}^{\infty} \left[\frac{1}{2} (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))^2 + I_p \right] dt$. 对于大部分发射的电子其感受到的库仑力远小于电场力, 所以可以将其看作微扰通过对轨迹 \mathbf{r}_1 , 复数时间和作用量的修正来处理. 该修正会对作用量有两个贡献, 一个是由势能导致, 记作

$$S_C^{(1)}(\mathbf{p}) = \int_{t_s}^{\infty} U_c[\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t)] dt = \int_{t_s}^{\infty} \frac{\hat{z} dt}{|\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t)|}, \quad (76)$$

另一个是由于轨迹修正 \mathbf{r}_1 导致的, 记作

$$S_C^{(2)}(\mathbf{p}) = \int_{t_s}^{\infty} [\mathbf{v}_0 \cdot \mathbf{v}_1 - \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}_1] dt. \quad (77)$$

修正量 \mathbf{r}_1 由以下牛顿方程所决定:

$$\ddot{\mathbf{r}}_1 = -\frac{Z_q(\mathbf{r}_0 + \mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_0 + \mathbf{r}_1|^3}, \quad (78)$$

其中, Z_q 为电荷量. 如果选择轨迹 $\mathbf{r}_0(\mathbf{p}, t)$, 并且在实时间 $t \geq t_0$ 演化 (78) 式, 那么将得到不同的末动量 $\mathbf{v}(t \rightarrow +\infty) \neq \mathbf{p}$, 这将无法对应一个特定的

末动量 \mathbf{p} 修正其跃迁振幅. 但是, 如果假定一个其他没有库仑的轨迹 $\mathbf{r}_0(\tilde{\mathbf{p}}, t)$, 在实时间演化 (78) 式其末动量恰好等于需要的动量 $\tilde{\mathbf{v}}(t \rightarrow +\infty) = \mathbf{p}$. 那么可以在作用量中用 $\tilde{\mathbf{p}}$ 替代 \mathbf{p} , 令 $\mathbf{r}_0(\tilde{\mathbf{p}}, t) = \tilde{\mathbf{r}}_0(\mathbf{p}, t)$, $t_s(\tilde{\mathbf{p}}) = \tilde{t}_s(\mathbf{p})$, 库仑修正 \mathbf{r}_1 的初始条件为 $\mathbf{r}_1(\tilde{t}_0) = \mathbf{v}_1(\tilde{t}_0) = 0$. 那么根据 (76) 式与 (77) 式可以计算出 $S_C^{(1)}(\tilde{\mathbf{p}})$ 与 $S_C^{(2)}(\tilde{\mathbf{p}})$ 这 3 个作用量. 因此, 修正后的电离振幅可以记作

$$M_{\mathbf{p}}^{\text{CCSFA}} = -\frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}}}{\sqrt{2}} \sum_s \frac{\exp(-iS_s(\tilde{\mathbf{p}}))}{S_s''(\tilde{\mathbf{p}})}. \quad (79)$$

其中, $S_s(\tilde{\mathbf{p}}) = S_s(\mathbf{p}) + S_C^{(1)}(\tilde{\mathbf{p}}) + S_C^{(2)}(\tilde{\mathbf{p}})$. 可以看出该修正只是对跃迁振幅的指数项进行了修正, 这是因为其余项相比于指数项对于参数的依赖性很弱, 所以可以忽略对其修正.

5 基于轨迹的库仑修正强场近似

SFA 是一种广泛且成功地应用于处理强场电离过程的理论计算方法. 在其最简单的形式中, 只考虑所谓的“直接”电子, 这些电子在电离之前被束缚在原子上, 由于激光场的强度远大于库仑势的强度, 电子在电离之后只在激光场的作用下运动, 因此不存在散射电子. 而 TCSFA 是在 SFA 的基础上对电子轨迹进行了修正, 其不仅仅是体现在电子的运动方程, 在作用量上也进行了修正. 由于在轨迹中考虑了库仑势, 那么电子不仅有直接电子, 同时也存在散射电子 [24]. 根据鞍点方程 $\partial S(t)/\partial t = \frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + I_p = 0$, 可知电子开始时间 t_s 为复数, 所以其电子轨迹可分为 2 部分: 一部分为 $t_s \rightarrow \text{Re}[t_s] = t_r$ 描述了电子在势垒下的过程; 另一部分为 $t_r \rightarrow \infty$ 描述了电子在经典区域的过程. 在势垒下电子的轨迹不受库仑势的影响, 在经典区域电子的轨迹会受到库仑势的扰动, 在整个过程中作用量都引入了库仑势的修正. 虽然势垒下作用量考虑了库仑势的影响, 但是鞍点方程并没有考虑该修正, 所以 TCSFA 的鞍点方程与 SFA 的鞍点方程一致. 鞍点方程的每个解, 称为鞍点, 对应着一个复电离时间. 然而, 对于大量的初始系综, 求解这些鞍点方程是非常耗时的. 为了克服这一困难, Xiao 等 [60] 提出了一种时间采样的方法来解决这个问题. 由鞍点方程可知通过时间上的采样从而求解对应

的动量 \mathbf{p} 比在动量上的采样求解时间容易很多.

通过给定的渐进动量求解鞍点方程得到电子开始时间 t_s , TCSFA 计算过程分为势垒下与经典区 2 部分. 电子在势垒下开始位置与电子到达经典区的初始位置分别记为 $\mathbf{r}_{\text{sub}}(t_s)$ 与 $\mathbf{r}(t_0)$, 由于势垒下电子的轨迹不受库仑势的影响, 所以势垒下的运动方程为

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_{\text{sub}}(t) &= \mathbf{p} + \mathbf{A}(t), \\ \mathbf{r}_{\text{sub}}(t) &= \int_{t_s}^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)] dt + \mathbf{r}_{\text{sub}}(t_s). \end{aligned} \quad (80)$$

但是势垒下的作用量考虑库仑势作了修正, 记作

$$S_{\text{sub}}(t) = \int_{t_s}^t \left\{ \frac{1}{2}[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 - \frac{Z_q}{\sqrt{r_{\text{sub}}^2(t)}} + I_p \right\} dt. \quad (81)$$

虽然经典运动过程中考虑了库仑势的扰动, 但是其初始条件与 SFA 一样, 记作

$$\mathbf{v}_{\text{re}}(t_0) = \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_0), \quad \mathbf{r}_{\text{re}}(t_0) = \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_0} \mathbf{A}(t) dt \right]. \quad (82)$$

其运动方程引入了库仑力导致其发生了畸变, 所以 $\mathbf{v}_{\text{re}}(t \rightarrow t_f) \neq \mathbf{p}$, 运动方程由下式描述:

$$\dot{\mathbf{r}}_{\text{re}}(t) = \mathbf{v}_{\text{re}}(t), \quad \dot{\mathbf{v}}_{\text{re}}(t) = -\mathbf{E}(t) - \nabla_{\mathbf{r}} V[\mathbf{r}_{\text{re}}(t)]. \quad (83)$$

相应的经典运动中其作用量表示为

$$S_{\text{re}}(t) = \int_{t_0}^t \left\{ \frac{1}{2}[\mathbf{v}_{\text{re}}(t)]^2 - \frac{Z_q}{|\mathbf{r}_{\text{re}}(t)|} + I_p \right\} dt. \quad (84)$$

电子的电离概率等于跃迁振幅的平方, 根据 (75) 式可以得到

$$\omega = |M_{\mathbf{p}}|^2 = \left| \sum_s \frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}} \exp(-iS)}{\sqrt{2} S_s''} \right|^2, \quad (85)$$

其中, $S_s'' = [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot [-\mathbf{E}(t_s)]$, 总作用量分为两部分, 表示为

$$S = S_{\text{sub}}(t_0) + S_{\text{re}}(t_f). \quad (86)$$

由于 $S_{\text{re}}(t_f)$ 为实数, 但是 $S_{\text{sub}}(t_0)$ 为复数, 所以电离概率可以重写为

$$\begin{aligned} \omega &= \left| \sum_s \frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}} \exp(\text{Im}[S_{\text{sub}}(t_0)])}{\sqrt{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)]} \right. \\ &\quad \left. \times [-\mathbf{E}(t_s)] \exp\{-i[\text{Re}[S_{\text{sub}}(t_0)] + S_{\text{re}}(t_f)]\} \right|^2 \\ &= \left| \sum_s \omega_0 \cdot \exp(-iS_i) \right|^2, \end{aligned} \quad (87)$$

其中电子的电离概率为

$$w_0 = \frac{(2I_p)^{\frac{5}{4}}}{\sqrt{2}} \frac{\exp(\text{Im}[S_{\text{sub}}(t_0)])}{[\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot [-\mathbf{E}(t_s)]}, \quad (88)$$

相位表示为

$$S_i = \text{Re}[S_{\text{sub}}(t_0)] + S_{\text{re}}(t_f). \quad (89)$$

通过初始条件很容易计算出电子的电离概率 w_0 , 但是求解末态的动量与累积的作用量 $S_{\text{re}}(t_f)$ 需要演化该动力学方程 (83) 式. 这里使用了四阶龙格-库塔方法来求解该微分方程组 [61].

电场在 $t = t_f$ 时关闭, 自由电子的渐近动量 $\mathbf{p}(\infty)$ 等于电场结束时的动量 $\mathbf{p}(t_f)$. 但是在 TCSFA 中, 由于长程库仑势的作用, 电子加速度不断变化, 因而产生了 $\mathbf{p}(\infty) \neq \mathbf{p}(t_f)$. 若能量小于零, 这部分电子被认为束缚到了里德伯态而未被电离. 在没有电场的系统中, 能量大于零的电子只受到中心库仑力的作用, 可以看作经典二体问题, 可以用开普勒轨道处理. 事实上, 电场结束时电子的动量 $\mathbf{p}(t_f)$ 与其位置 $\mathbf{r}(t_f)$ 唯一地确定了其在母离子库仑势下的运动轨迹, 经典力学的双曲线运动标准公式可以解析求出电子渐近动量 [62,63]:

$$\mathbf{p}(\infty) = \mathbf{p}(t_f) \cdot \frac{\mathbf{p}(\infty)(\mathbf{A} \times \mathbf{M}) - \mathbf{A}}{1 + \mathbf{p}^2(\infty) M^2}. \quad (90)$$

这里, $\mathbf{M} = \mathbf{r}(t_f) \times \mathbf{p}(t_f)$ 和 $\mathbf{A} = \mathbf{p}(t_f) \times \mathbf{M} - \mathbf{r}(t_f)/r(t_f)$

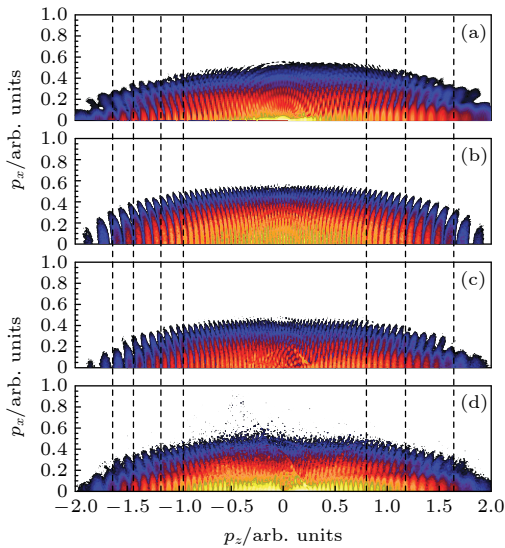


图 6 $p_z - p_x$ 平面内光电子动量分布图 [24] (a) TDSE, (b) SFA, (c) TCSFA 不考虑势垒下作用量; (d) TCSFA 考虑势垒下作用量

Fig. 6. Logarithmically scaled photoelectron momentum distribution in $p_z - p_x$ plane [24]: (a) TDSE, (b) SFA and (c) TCSFA without sub-CC; (d) TCSFA with sub-CC.

分别代表角动量守恒与龙格-楞次矢量. $\mathbf{p}(\infty)$ 可由能量守恒定律得到:

$$\frac{\mathbf{p}^2(\infty)}{2} = \frac{\mathbf{p}^2(t_f)}{2} - \frac{1}{r}. \quad (91)$$

最终, 将大量随机轨道在末速度空间下相干叠加便能得到如图 6 所示的动量图, 可以看出考虑势垒下作用量的 TCSFA 能定量地模拟 TDSE 结果.

6 库仑量子轨迹强场近似

第 5 节提到的 TCSFA 是通过给定的渐进动量求解鞍点方程得到电子的初始动量, 然后通过引入库仑势的动力学方程演化电子的状态, 最后统计电子的末态分布. CQSFA 则是选择给定的末动量通过 3 个鞍点等式去求解电子的不同初态, 这不同的初态包括 4 类轨迹通过引入库仑势的动力学演化最后都会达到给定的末态从而相干叠加 [25,26].

SFA 与 CCSFA 中鞍点方程如 (56) 式所示只有一个等式, 给定渐进动量 \mathbf{p} 从而计算复数电离时间 t_s , 这里的 \mathbf{p} 在强场近似中对应末动量. 但是在 CQSFA 中, 不仅仅需要找到 t_s , 同时需要根据电子末动量 $\mathbf{p}(t_f)$ 来求得电子初始位置 $\mathbf{r}(t_f)$ 与初始动量 $\mathbf{p}(t_f)$. 所以其鞍点方程必须同时满足 3 个等式:

$$\frac{[\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} + \dot{\mathbf{p}}(t_s) \cdot \mathbf{r}(t_s) + V(\mathbf{r}(t_s)) = -I_p, \quad (92)$$

$$\nabla_r S(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t, t_s) = 0 \Rightarrow \dot{\mathbf{p}} = -\nabla_r V(\mathbf{r}(\tau)), \quad (93)$$

$$\nabla_p S(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t, t_s) = 0 \Rightarrow \dot{\mathbf{r}} = \mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau). \quad (94)$$

(92) 式描述了隧穿过程能量守恒, (93) 式与 (94) 式描述了电子在连续态的动力学过程 $\tau \in (t_r, T_p)$. 对于简单的库仑势 $V(\mathbf{r}) = -C/|\mathbf{r}|$, 由 (93) 式可以得到

$$\mathbf{r} \cdot \dot{\mathbf{p}} = -\mathbf{r} \cdot \nabla_r V(\mathbf{r}(\tau)) = V(\mathbf{r}(\tau)). \quad (95)$$

将 (95) 式代入 (92) 式可得

$$\frac{[\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} + 2 \cdot \dot{\mathbf{p}}(t_s) \cdot \mathbf{r}(t_s) = -I_p, \quad (96)$$

其中 $\mathbf{p}(t_s)$ 为势垒下的渐进动量, 通常近似值是固定的, 即 $\mathbf{p}(t_1) = \mathbf{p}(t_2)$, $t_1 \in [t_s, t_f]$, $t_2 \in [t_s, t_f]$. 那么就有 $\dot{\mathbf{p}}(t_s) \rightarrow 0$, 将其代入 (96) 式得

$$\frac{[\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} = -I_p. \quad (97)$$

设电场矢量为 $A_z(t) = A_0 \cos(\omega t)$, (97) 式有两个鞍点解, 这里记作

$$t_s^{(1,4)} = \frac{1}{\omega} \arccos \left[\frac{-p_{0//} - i\sqrt{2I_p + p_{0\perp}^2}}{A_0} \right],$$

$$t_s^{(2,3)} = \frac{2\pi}{\omega} - \frac{1}{\omega} \arccos \left[\frac{-p_{0//} - i\sqrt{2I_p + p_{0\perp}^2}}{A_0} \right], \quad (98)$$

其中 $p_{0//}$ 为平行于电场方向电子的初始速度, $p_{0\perp}$ 为垂直于电场方向电子的初始速度. 1, 2, 3, 4 分别代表 4 类不同初始条件的轨道, 其中 (1, 4) 与 (2, 3) 时间表达式一样但是由于其初始速度不同导致时间也是不同的. 将隧穿位置作为初始位置与末动量作为限制条件, 求解 (93) 式与 (94) 式得到电子初始动量. 其具体做法是求解一个反问题, 运用迭代的方法不断地增加库仑耦合的作用. 首先假设库仑耦合作用为 0, 即 $C = 0$, 用强场近似的解作为初始解, 再令 $C = 0.1$ 代入之前的解, 显然在动力学方程中引入的库仑耦合作用发生改变之后, 末动量的解不等于之前的限制条件, 这时需要根据限制条件来修正之前的解从而改变初始动量. 然后不断增加库仑耦合作用, 直到 $C = 1$ 时库仑耦合作用完全引入之前的鞍点方程, 这样就得到了 4 类初始条件不同但是末动量一致的轨道. 这种方法没有根据最终动量明确地参数化初始动量, 但使每个轨道的初始动量能够计算出任何给定的最终动量. 使用鞍点近似, 由 (20) 式可得跃迁振幅为

$$M(\mathbf{p}_f) = -i \sum_s \left\{ \det \left[\frac{\partial \mathbf{p}_s(t_f)}{\partial \mathbf{r}_s(t_s)} \right] \right\}^{-\frac{1}{2}}$$

$$\times c(t_s) e^{iS(\mathbf{p}_s, \mathbf{r}_s, t_f, t_s)}$$

$$\times \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_s) | \Psi_0 \rangle, \quad (99)$$

其中下标 s 代表鞍点, $t_s, \mathbf{p}_s, \mathbf{r}_s$ 是通过求解 (92) 式—

(97) 式得到, 进而根据空间积分或者傅里叶变换求解 $\langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_s) | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t_s) | \Psi_0 \rangle$. $\partial \mathbf{p}_s(t_f) / \partial \mathbf{r}_s(t_s)$ 为稳定因子, 前项因子为

$$c(t_s) = \sqrt{\frac{2\pi i}{\partial^2 S(\mathbf{p}, t_s) / \partial t_s^2}}. \quad (100)$$

相位分为两项:

$$S(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s) = S_{\downarrow}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s) + S_{\rightarrow}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s), \quad (101)$$

其中等式右边第 1 项与第 2 项分别为延时间虚轴与时间实轴累计的作用量. 沿虚轴时的轨迹没有受库仑势的影响, 作用量可表示为

$$S_{\downarrow}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s) = I_p(it_s) - \frac{1}{2} \int_{t_s}^{t_f} [\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau$$

$$- \int_{t_s}^{t_f} V(\mathbf{r}_0(\tau)) d\tau, \quad (102)$$

其中

$$\mathbf{r}_0(t) = \int_{t_s}^t (\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(\tau)) d\tau$$

$$- \text{Im} \left[\int_{t_s}^{t_f} (\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(\tau)) d\tau \right]. \quad (103)$$

沿实轴的作用量表示为

$$S_{\rightarrow}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s) = I_p t_f - \frac{1}{2} \int_{t_s}^{t_f} [\mathbf{p}(\tau) + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau$$

$$- \int_{t_s}^{t_f} [\dot{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{r} + V(\mathbf{r}(\tau))] d\tau. \quad (104)$$

将 (95) 式代入 (104) 式可得

$$S_{\rightarrow}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_f, t_s) = I_p t_f - \frac{1}{2} \int_{t_s}^{t_f} [\mathbf{p}(\tau) + \mathbf{A}(\tau)]^2 d\tau$$

$$- 2 \int_{t_s}^{t_f} V(\mathbf{r}(\tau)) d\tau, \quad (105)$$

其中

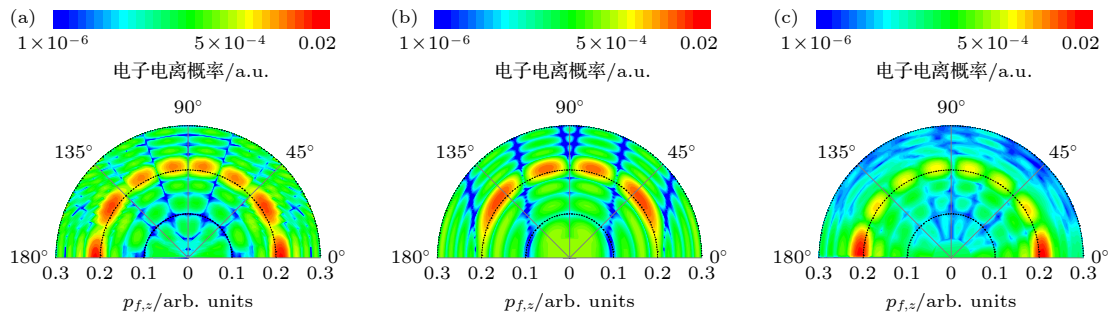


图 7 氢原子二维光电子角度分布^[26] (a) CQSFA; (b) SFA; (c) TDSE

Fig. 7. Two-dimensional photoelectron angular distributions of hydrogen atom^[26]: (a) CQSFA; (b) SFA; (c) TDSE.

$$\mathbf{r}(t) = \int_{t_r}^t (\mathbf{p}(\tau) + \mathbf{A}(\tau)) d\tau + \text{Re} \left[\int_{t_s}^{t_r} (\mathbf{p}(t_s) + \mathbf{A}(\tau)) d\tau \right]. \quad (106)$$

最后, 将相同末动量的 4 类轨道相干叠加可得到光电电子角度分布 (图 7). 由图 7 可以看到, CQSFA 也能定量地复制 TDSE 的结果. 并且计算中只存在 4 类轨迹, 在解析物理图像时能更加有效地辨识背后的产生机制.

7 结论与展望

费曼路径积分方法提供了一种量子轨迹的强场动力学计算方法, 使得人们可以从经典的视角去研究量子效应, 为强场物理在研究微观世界粒子动力学过程取得了突破性的进展. 本文介绍了使用遗传算法与牛顿迭代法优化复平面鞍点方程的计算模型, 这两种方法能够有效减少计算所消耗的时间. 详细推导了几种费曼路径积分强场动力学计算方法, 包括 SFA, CCSFA, TCSFA 与 CQSFA. 由于 SFA 忽略了库仑势的作用, 不能在定量上与实验结果相符合. CCSFA 在作用量里面考虑了库仑势的影响, 同时将轨迹的修正以作用量的形式考虑在内. TCSFA 将轨迹的修正直接考虑在运动方程中, 同时作用量也由每一时刻能量的积分得到. 这 2 种方法都需要大量的计算轨道, CQSFA 则是将每个末动量下分为 4 类轨道, 有效地减少了计算量同时保证了计算的质量. 相比前两种方法, 该方法虽然简化了计算, 但是鞍点方程却更为复杂, 不易于寻找到合适的鞍点, 通常需要不断迭代才能寻找到合适的鞍点. 由于这 3 种方法都引入了库仑势的作用, 其都能与实验结果做定量比较. 虽然现在费曼路径积分强场动力学计算方法已经被广泛应用, 但是其局限性很明显: 一是多原子、多电子等复杂波函数很难解析得到; 二是轨道如何从经典轨迹解释清楚量子效应. 如何将费曼路径积分强场动力学计算方法推广至更复杂的系统, 对量子效应提出更好的解释模型, 需要在此基础上发展更加有效的理论方法.

参考文献

- [1] Schrödinger E 1926 *Ann. Phys.* **79** 361
 [2] Born M, Jordan P 1925 *Zeit. Phys.* **34** 858

- [3] Feynman R P 1948 *Rev. Mod. Phys.* **20** 367
 [4] Feynman R P, Hibbs A R 1965 *Quantum Mechanics and Path Integrals* (New York: McGraw Hill Press) p77
 [5] Maiman T H 1960 *Nature* **187** 493
 [6] Voronov G S, Delone N B 1965 *JETP Lett.* **1** 66
 [7] Agostini P, Barjot G, Bonnafant-Laurier J, Mainfray G, Manus C, Multiphoton J M 1968 *IEEE J. Quantum Electron.* **4** 667
 [8] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
 [9] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP.* **20** 1307
 [10] Faisal F H M 1973 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **6** L89
 [11] Reiss H R 1980 *Phys. Rev. A* **22** 1786
 [12] Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M V 1966 *Sov. Phys. JETP.* **23** 924
 [13] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P 1986 *Sov. Phys. JETP.* **64** 1191
 [14] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L' Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
 [15] Mosert V, Bauer D 2016 *Comput. Phys. Commun.* **207** 452
 [16] Tao L, Scrinzi A 2012 *New J. Phys.* **14** 013021
 [17] Jain M, Tzoar N 1978 *Phys. Rev. A* **18** 538
 [18] Duchateau G, Cormier E, Gayet R 2002 *Phys. Rev. A* **66** 023412
 [19] Yu S G, Wang Y L, Lai X Y, Huang Y Y, Quan W, Liu X J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 033418
 [20] Yudin G L, Chelkowski S, Bandrauk A D 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** L17
 [21] Popruzhenko S V, Paulus G G, Bauer D 2008 *Phys. Rev. A* **77** 053409
 [22] Popruzhenko S V, Bauer D 2008 *J. Mod. Optic.* **55** 2573
 [23] Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, Bauer D 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 253002
 [24] Yan T M, Bauer D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 053403
 [25] Lai X Y, Poli C, Schomerus H, Figueira de Morisson Faria C 2015 *Phys. Rev. A* **92** 043407
 [26] Lai X Y, Yu S G, Huang Y Y, Hua L Q, Gong C, Quan W, Figueira de Morisson Faria C, Liu X J 2017 *Phys. Rev. A* **96** 013414
 [27] Corkum P B, Burnett N H, Brunel F 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1259
 [28] Salières P, L'Huillier A, Lewenstein M 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3776
 [29] Salières P, Carré B, Le Déroff L, Grasbon F, Paulus G G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milosýević D B 2001 *Science* **292** 902
 [30] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, Jungmann J H, Smolkowska A S, Logan P S W M, Lépine F, Cauchy C, Zamith S, Marchenko T, Bakker J M, Berden G, Redlich B, Van Der Meer A F G, Muller H G, Vermin W, Schafer K J, Spanner M, Ivanov M Y U, Smirnova O, Bauer D, Popruzhenko S V, Vrakking M J J 2011 *Science* **331** 61
 [31] Li M, Geng J W, Liu H, Deng Y, Wu C Y, Peng L Y, Gong Q H, Liu Y Q 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 113002
 [32] Hu B, Liu J, Chen S 1997 *Phys. Lett. A.* **236** 533
 [33] Shvetsov-Shilovski N I, Lein M, Madsen L B, Räsänen E, Lemell C, Burgdörfer J, Arbib D G, Tókési K 2016 *Phys. Rev. A* **94** 013415
 [34] Song X, Lin C, Sheng Z H, Liu P, Chen Z J, Yang W F, Hu S L, Lin C D, Chen J 2016 *Sci. Rep.* **6** 28392
 [35] Liu M M, Li M, Wu C Y, Gong Q H, André Staudte, Liu Y Q 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 163004
 [36] Liu M M, Liu Y Q 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 105602

- [37] Gong X C, Lin C, He F, Song Q Y, Lin K, Ji Q Y, Zhang W B, Ma J Y, Lu P F, Liu Y Q, Zeng H P, Yang W F, Wu J 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 143203
- [38] Song X H, Shi G L, Zhang G J, Xu J W, Lin C, Chen J, Yang W F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 103201
- [39] Porat G, Alon G, Rozen S, Pedatzur O, Krüger M, Azoury D, Natan A, Orenstein G, Bruner B D, Vrakking M J J, Dudovich N 2018 *Nat. Commun.* **9** 2805
- [40] Trabert D, Brennecke S, Fehre K, Anders N, Geyer A, Grundmann S, Schöffler M S, Schmidt L Ph H, Jahnke T, Dörner R, Kunitski M, Eckart S 2021 *Nat. Commun.* **12** 1697
- [41] Torlina L, Morales F, Kaushal J, Ivanov I, Kheifets A, Zielinski A, Scrinzi A, Muller H G, Sukiasyan S, Ivanov M Smirnova O 2015 *Nat. Phys.* **11** 503
- [42] Tong J H, Liu X W, Dong W H, Jiang W Y, Zhu M, Xu Y D, Zuo Z T, Lu P F, Gong X C, Song X H, Yang W F, Wu J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 173201
- [43] Scully M O, Zubairy M S 1997 *Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge University Press) pp146–149
- [44] Bauer D, Milošević D B, Becker W 2005 *Phys. Rev. A* **72** 023415
- [45] Bleistein N, Handelsman R A 1986 *Asymptotic Expansions of Integrals* (Dover: Dover Publications) p252
- [46] Booth A D 1949 *J. Mech. Appl. Math.* **2** 460
- [47] Booth A D 1947 *Nature* **160** 196
- [48] Huang L, Wu T 2018 *Theor. Biol. Med. Modell.* **15** 22
- [49] Lai X Y, Figueira de Morisson Faria C 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013406
- [50] Maxwell A S 2019 *Ph. D. Dissertation* (London: University College London)
- [51] Yang S D, Song X H, Liu X W, Zhang H D, Shi G L, Yu X H, Tang Y J, Chen J, Yang W F 2020 *Laser Phys. Lett.* **17** 095301
- [52] Becker W, Grasbon F, Kopold R, Milošević D B, Paulus G G, Walther H 2002 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **48** 35
- [53] Paul M, Gräfe S 2019 *Phys. Rev. A* **99** 053414
- [54] Liu M M, Shao Y, Han M, Ge P P, Deng Y K, Wu C Y, Gong Q H, Liu Y Q 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 043201
- [55] Yan T M 2012 *Ph. D. Dissertation* (Germany: Universität Rostock)
- [56] Arbó D G, Ishikawa K L, Persson E, Burgdörfer J 2012 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **279** 24
- [57] Milošević D B, Paulus G G, Bauer D, Becker W 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** R203
- [58] Becker A, Faisal F H M 2005 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** R1
- [59] Popov V S 2004 *Phys. Usp.* **47** 855
- [60] Xiao X R, Wang M X, Xiong W H, Peng L Y 2016 *Phys. Rev. E* **94** 053310
- [61] Li Q Y, Wang N C, Yi D Y 2008 *Numerical Analysis* (5th Ed.) (Beijing: Tsinghua University Press) p286 (in Chinese) [李庆扬, 王能超, 易大义 2008 数值分析 (第五版) (北京: 清华大学出版社) 第 286 页]
- [62] Shvetsov-Shilovski N I, Goreslavski S P, Popruzhenko S V, Becker W 2009 *Laser Phys.* **19** 1550
- [63] Shvetsov-Shilovski N I, Dimitrovski D, Madsen L B 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023428

SPECIAL TOPIC—Attosecond physics

Feynman path-integral strong-field dynamics calculation method*

Liu Xi-Wang¹⁾ Zhang Hong-Dan¹⁾ Ben Shuai¹⁾ Yang Shi-Dong²⁾
Ren Xin²⁾ Song Xiao-Hong^{1)†} Yang Wei-Feng^{1)3)‡}

1) (*School of Physics and Optoelectronic engineering, Hainan University, Haikou 570228, China*)

2) (*College of Science, Shantou University, Shantou 515063, China*)

3) (*Center for Theoretical Physics, Hainan University, Haikou 570228, China*)

(Received 25 March 2023; revised manuscript received 19 June 2023)

Abstract

The emergence and development of ultrafast intense lasers and attosecond measurement techniques have made it possible to observe and control the motions of electrons on a timescale of attoseconds and a spatial scale of atoms. With the improvement of experimental measurement accuracy, higher requirements are put forward for the accuracy of theoretical calculation methods. Extracting temporal and spatial information about ultrafast dynamics from experimental results through using theoretical models presents a significant challenge. Compared with the exact solutions of the time-dependent Schrödinger equation, the Feynman path-integral method for strong-field dynamics calculations offers a simpler model and higher computational efficiency. The electronic wave packet is regarded as a particle with different initial states, and by analyzing the motion of the particle, the causes of various nonlinear physical phenomena in strong fields can be clarified. This work introduces the saddle point approximation into strong field dynamics calculations based on the strong field approximation theory. Furthermore, the Coulomb-corrected strong field approximation method, trajectory-based Coulomb-corrected strong field approximation method, and Coulomb quantum trajectory strong field approximation method are presented in detail. This review aims to provide relevant methods and literature references for studying strong field dynamics theoretical calculations and also to present some ideas for developing new algorithms.

Keywords: strong field approximation, saddle point approximation, Coulomb-corrected

PACS: 87.15.mm, 34.50.Fa, 32.80.Rm

DOI: [10.7498/aps.72.20230451](https://doi.org/10.7498/aps.72.20230451)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12074240, 12374260, 12204135, 12264013, 12204136), the Natural Science Foundation of Hainan Province, China (Grant Nos. 122CXTD504, 123MS002, 123QN179, 123QN180, 122QN217), and the Sino-German Mobility Programme, China (Grant No. M-0031).

† Corresponding author. E-mail: song_xiaohong@hainanu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: wfyang@hainanu.edu.cn



费曼路径积分强场动力学计算方法

刘希望 张宏丹 贲帅 杨士栋 任鑫 宋晓红 杨玮枫

Feynman path–integral strong–field dynamics calculation method

Liu Xi-Wang Zhang Hong-Dan Ben Shuai Yang Shi-Dong Ren Xin Song Xiao-Hong Yang Wei-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 198701 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230451

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230451>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

强场非次序双电离中再碰撞动力学的强度依赖

Intensity–dependent recollision dynamics in strong–field nonsequential double ionization

物理学报. 2019, 68(3): 033201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181811>

基于平均场近似的BP算法求解随机块模型

A mean–field approximation based BP algorithm for solving the stochastic block model

物理学报. 2021, 70(22): 228901 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210511>

基于多组态含时Hartree–Fock方法研究电子关联对于H₂分子强场电离的影响

Multiconfiguration time–dependent Hartree–Fock treatment of electron correlation in strong–field ionization of H₂ molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

零阶Bessel驻波场中任意粒子声辐射力和力矩的Born近似

Born approximation of acoustic radiation force and torque for an arbitrary particle in a zero–order standing Bessel beam

物理学报. 2022, 71(10): 104302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212251>

随机波动率费曼路径积分股指期货期权定价

Pricing of stochastic volatility stock index option based on Feynman path integral

物理学报. 2019, 68(20): 203101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190714>

弱耦合近似下激子–激子湮灭动力学研究

Theoretical study of exciton–exciton annihilation dynamics in the approximation of weak coupling

物理学报. 2021, 70(22): 227302 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211242>