物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

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

徐新荣 仲丛林 张铱 刘峰 王少义 谭放 张玉雪 周维民 乔宾

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma

Xu Xin-Rong Zhong Cong-Lin Zhang Yi Liu Feng Wang Shao-Yi Tan Fang Zhang Yu-Xue Zhou Wei-Min Qiao Bin

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 70, 084206 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210339
在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.70.20210339
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

等离子体光栅靶的表面粗糙度对高次谐波产生的影响
Effect of plasma grating roughness on high-order harmonic generation
物理学报. 2017, 66(24): 244209 https://doi.org/10.7498/aps.66.244209

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

双等离子体团相互作用的磁流体力学模拟
Simulations for two colliding plasma bubbles embedded into an external magnetic field
物理学报. 2017, 66(7): 075202 https://doi.org/10.7498/aps.66.075202

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

相对论强激光与近临界密度等离子体相互作用的质子成像
Proton imaging of relativistic laser-produced near-critical-density plasma
物理学报. 2019, 68(15): 155201 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190610

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 polarizationgating pulse with 10 fs duration
物理学报. 2019, 68(18): 184201 https://doi.org/10.7498/aps.68.20190392

专题：超短超强激光等离子体物理

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*

徐新荣[1)2)] 仲丛林[2)3)] 张铱[2)3)] 刘峰[4)5)] 王少义[6)]
谭放[6)] 张玉雪[6)] 周维民[6)] 乔宾[2)3)†]

1) (国防科技大学文理学院物理系, 长沙 410073)

2) (北京大学物理学院, 核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871)

3) (北京大学应用物理与技术研究中心, 高能量密度物理数值模拟教育部重点实验室, 北京 100871)

4) (上海交通大学物理与天文学院, 激光等离子体教育部重点实验室, 上海 200240)

5) (上海交通大学 IFSA 协调创新中心, 上海 200240)

6) (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 等离子体物理国家重点实验室, 绵阳 621000)

(2021 年 2 月 21 日收到; 2021 年 3 月 28 日收到修改稿)

对超快过程的探测和控制决定了人类在微观层面认识和改造物质世界的能力. 阿秒光源可完成对组成物质的电子运动及其关联效应进行超高时空分辨的探测和操控, 为人类认识微观世界提供了全新手段, 被认为是激光科学史上最重要的里程碑之一. 世界主要科技强国都将阿秒科学列为未来 10 年重要的科技发展方向. 利用强激光与物质相互作用产生高次谐波是突破飞秒极限实现高亮度阿秒脉冲辐射的重要方案之一, 成为了近年来激光等离子体领域的研究热点. 本文聚焦强激光与等离子体相互作用中的高次谐波和阿秒脉冲辐射, 主要介绍其产生机制、研究进展和前沿应用, 并对未来的发展趋势和创新突破进行展望.

关键词： 强激光, 等离子体, 高次谐波, 阿秒脉冲

PACS： 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.38.–r **DOI：** 10.7498/aps.70.20210339

1 引 言

自然物质世界的时间尺度跨越从 10^{-24} s 的核子运动特征周期到 10^{18} s 的宇宙年龄, 如图 1 所示. 在这些不同时空尺度上, 物质世界是互相关联互相耦合的, 微观尺度上超快动力学过程的累积与演化决定了物质的宏观特性. 因此对微观世界的认识有助于我们更深地了解物质世界的本质. 调 Q、锁模等激光技术的发展使得对超快动力学过程的研究进入飞秒 ($1\ \text{fs} = 10^{-15}\ \text{s}$) 量级, 人类得以在原子、分子的层面上进行科学研究和技术创新, 有力推进了物理、化学、生物、医学等领域的迅速发展, 并催生了新的科学前沿. 飞秒化学即是一个典型实例, 科学家 Zewail [1] 利用飞秒激光成功捕获到分子化学键的断裂和形成过程, 从根本上改变了人们对化学反应过程的认识, 为可控的化学反应创造了可能性, 引发了整个化学及相关学科的重大变革, Zewail 本人也因此荣获 1999 年诺贝尔化学奖. 飞秒激光在前沿科学和技术应用领域取得的成果

* 国防基础核科学挑战计划 (批准号: TZ2018005)、国家自然科学基金 (批准号: 11825502, 11921006, 12004433)、国家自然科学基金-中国工程物理研究院联合基金 (批准号: U1630246)、中科院先导基金 (批准号: XDA25050900)、国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0401100)、湖南省自然科学基金 (批准号: 2020JJ5649) 和国防科技大学科研计划项目 (批准号: ZK19-12) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: bqiao@pku.edu.cn

© 2021 中国物理学会 Chinese Physical Society

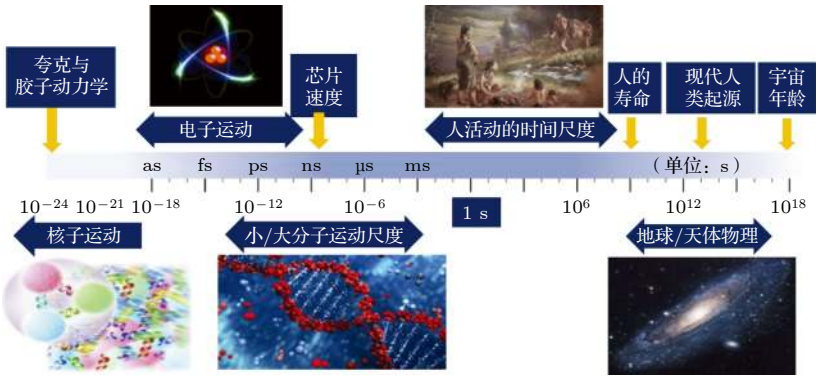

图 1 自然物质世界的典型时间跨越尺度: 从核子运动特征周期 10^{-24} s 到宇宙年龄 10^{18} s

Fig. 1. Typical time spans in the natural physical world: From 10^{-24} s for the characteristic period of nuclear motion to 10^{18} s for the age of the universe.

不断推动着超快光学向更短的阿秒 ($1\ \text{as} = 10^{-18}\ \text{s}$) 时间领域进军, 以实现对连接物理、化学、生物等学科的微观粒子——电子的动力学过程研究.

根据不确定性原理可知, 电磁波的脉冲宽度与频谱宽度成反比. 对于中心波长在可见光波段的电磁波, 即使完全锁相实现单周期输出, 脉冲的持续时间也无法突破阿秒极限. 因此实现阿秒脉冲输出的前提是产生极紫外甚至 X 射线频段的宽谱辐射. 在对强激光与物质非线性作用的研究中, 人们在反射光中诊断到了激光的谐波信号, 它兼具宽谱、高频的特点, 极富合成阿秒脉冲的潜力. 2001 年, Paul 等[2] 利用飞秒激光轰击气体产生的高次谐波, 得到了 250 as 的脉冲链辐射. 同年, Hentschel 等[3] 实现了 650 as 的单脉冲输出, 标志着超快科学的研究从此进入阿秒新纪元.

气体中的高次谐波可用半经典"三步"模型解释[4]: 在线偏振强激光的辐照下, 气体中的电子发生隧穿电离; 离化的电子在激光电场作用下先加速离开母核, 而后随着电场方向反转返回母核周围; 当电子被母核重新俘获, 多余的能量即以光子的形式释放出来. 该辐射过程每半个激光周期重复一次, 最终干涉产生梳齿状谱分布, 即激光的高次谐波. 根据电子的运动方程可得出它回到母核附近时的最大动能约 $3.17U_\text{p}$ (U_p 为激光的有质动力势), 对应谐波的截止能量为

$$\hbar\omega_\text{max} = I_\text{p} + 3.17U_\text{p}, \tag{1}$$

其中 I_p 为电子的电离能, ω_max 为高次谐波的截止频率, $\hbar$ 为约化普朗克常数.

气体高次谐波已得到广泛的理论和实验研究[5], 产生的阿秒脉冲宽度不断缩短. 截至目前, 实验上最短的孤立脉冲仅 43 as, 由苏黎世联邦理工学院 Wörner 课题组[6] 产生; 我国最短的实验记录为 88 as, 由国防科大赵增秀课题组[7] 创造. 但受气体离化阈值的限制, 驱动气体高次谐波辐射所需的泵浦激光强度一般不可超过 $10^{15}\ \text{W/cm}^2$[8], 而激光到高次谐波的能量转换效率通常只有 10^{-9}—10^{-5}[9], 因此通过这一方式难以产生高强度阿秒脉冲, 最大光子能量和最窄脉冲宽度也基本上达到了极限, 严重限制了它的广泛应用.

随着激光功率密度的提升, 稠密等离子体中的高次谐波日益引起科学家的研究兴趣. 相比于气体高次谐波, 这一方式无需考虑作用媒介的离化阈值, 可承受相对论强度的激光辐照. 此外, 稠密等离子体中的高次谐波产生于靶表面纳米宽度的趋肤深度内, 具备自锁相的优点, 辐射效率比气体高次谐波至少高两个数量级. 因此, 相对论强激光照射稠密等离子体产生的高次谐波有望推进阿秒脉冲向更高光子能量、更高辐射强度、更短持续时间迈进, 开拓其在 X 射线非线性光学、泵浦探测甚至量子电动力学等领域的应用.

本文将简述激光与等离子体相互作用中高次谐波和阿秒脉冲的辐射原理、研究进展和应用前景, 并对未来发展进行展望, 希望能够对该研究领域的相关学者有所助益. 本文结构如下: 第 2 节介绍主要的谐波辐射机理, 包括相干尾场辐射、相对论振荡镜和相干同步辐射机制; 第 3 节介绍相关研究进展, 包括谐波辐射效率提升、偏振特性调控、相位特征诊断、孤立阿秒脉冲产生、时频诊断技术等方面; 第 4 节简要介绍这一优质辐射源的典型应用, 包括电子动力学过程探测、相干衍射成像、极端物质状态诊断等方面的研究和极端超强场的产生; 最后为全文的总结和展望.

2 辐射机制

强激光与稠密等离子体相互作用驱动高次谐波辐射的研究最早可追溯到 1977 年, Burnett 等[10] 在从铝靶反射的激光中诊断到了高达 11 阶的谐波信号, 1981 年, Carman 等[11] 将谐波谱拓展至 29 阶. 尽管这些早期的实验结果在学术界引发了极大的研究兴趣, 但受激光技术和计算机模拟能力的限制, 在很长一段时间内高次谐波的研究主要还是集中于气体媒介. 直到 20 世纪末, 啁啾脉冲放大技术的提出使得激光峰值功率得到迅猛提升, 同时高性能大型并行计算机也得到快速发展, 促使这一领域再次引发研究热潮. 图 2 给出了目前强激光与稠密等离子体相互作用驱动高次谐波辐射的三种主要机制, 下面将展开具体介绍.

2.1 相干尾场辐射 (coherent wake emission, CWE)

相干尾场辐射 (CWE) 机制由 Quéré等[12] 提出, 用于解释强度介于 10^{15}—10^{18} W/cm^2 的 P 极化激光与密度不均匀等离子体斜相互作用产生高次谐波的原因. 其具体内涵如下: 当一束 P 极化激光斜照射在等离子体靶上时, 作用区内的电子经真空加热 (Brunel 机制) 获得能量. 由于激光无法在临界密度以上区域传播, Brunel 电子重新返回等离子体内部后即与激光场分离, 以近乎不变的速度继续向内传输. 在此过程中, 加速时间长、速度快的电子可追赶上前面加速时间短、速度慢的电子, 形成致密的电子束. 随着电子束扫过不同密度区, 其尾部激发起等离子体静电振荡, 该振荡通过线性模式转换为电磁辐射, 且辐射频率等于当地等离子体振荡频率. 图 3 给出了一维粒子模拟中 CWE 机制下典型的谐波辐射过程和辐射特性, 模拟中采用强度为 3.4×10^{17} W/cm^2 的 800 nm 激光以 45°角入射靶前有预等离子体分布的等离子体靶. 其中预等离子体尺度为 0.05λ (λ 为入射激光波长), 靶的最大电子密度为 $200n_c$ (n_c 为激光波长对应的等离子体临界密度).

为便于理论分析, 对于斜入射问题, 本文均通过坐标系变换, 将其转换为研究激光正入射具有

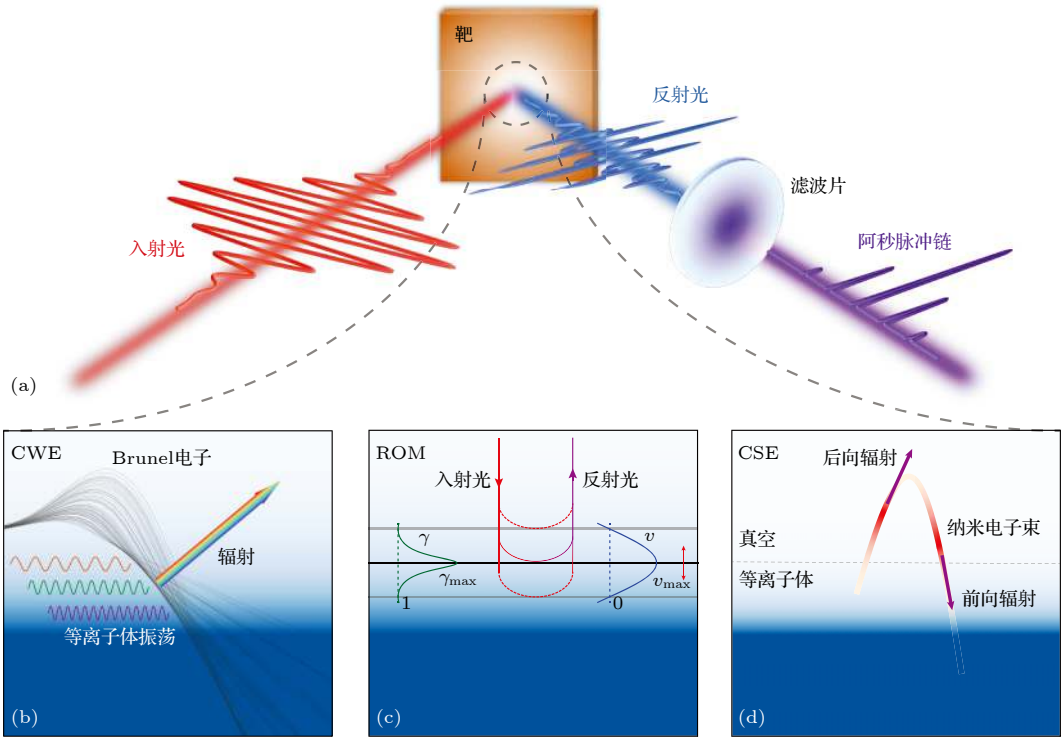

图 2 (a) 强激光稠密等离子体相互作用驱动高次谐波辐射的物理方案; (b)—(d) 相关的三种主要辐射机制示意图 (b) 相干尾场辐射 (coherent wake emission, CWE), (c) 相对论振荡镜 (relativistically oscillating mirror, ROM), (d) 相干同步辐射 (coherent synchrotron emission, CSE)

Fig. 2. (a) Schematic for high-order harmonic generation from intense laser interaction with overdense plasmas. (b)–(d) Schematics for three main radiation mechanisms: (b) Coherent wake emission (CWE); (c) relativistically oscillating mirror (ROM); (d) coherent synchrotron emission (CSE).

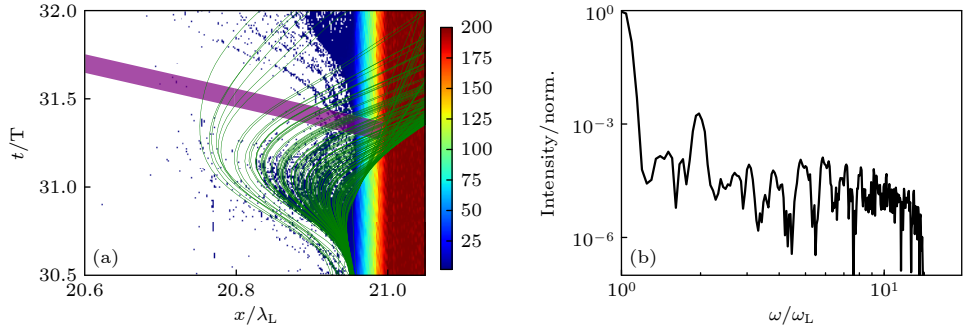

图 3 一维粒子模拟中获得的典型 CWE 机制的谐波辐射过程和辐射特性 (a) 电子密度分布随时间的变化, 绿线为 Brunel 电子轨迹, 紫色部分为对应时刻产生的频率介于 3—15 倍频之间的高次谐波; (b) 反射光的频谱分布. 这里采用强度为 3.4×10^{17} W/cm^2 的 800 nm 激光以 45°角斜入射预等离子体尺度为 0.05λ, 最大电子密度为 $200n_c$ 的等离子体靶

Fig. 3. Typical harmonic radiation process and radiation characteristics of CWE mechanism in one-dimensional (1D) particle-in-cell (PIC) simulation. (a) Temporal evolution of electron density. The green lines and the purple part are the trajectories of Brunel electrons and the high-order harmonic of the corresponding time with frequency between 3ω – 15ω respectively. (b) The spectrum of the reflected laser. Here, a laser with intensity of 3.4×10^{17} W/cm^2 and wavelength $\lambda=800$ nm is incident on a plasma target with preplasma scale length of 0.05λ and the maximum electron density of $200n_c$ at an angle of 45°.

初始动量等离子体靶的情形[13]. 令 x 轴方向为纵向, 电子束在 x 处激发的尾场可表示为 $\delta(x,t)=\delta_0\cos[\psi(x,t)]$, 其中 $\psi(x,t)=\omega_{\rm p}(x)\times(t-x)\cos\theta$, $\omega_{\rm p}$ 为当地等离子体的静电振荡频率, θ 为激光入射角. 该尾场的波矢 $k=-\partial\psi/\partial x$ 即为

$$k=-\frac{\partial\omega_{\rm p}}{\partial x}(t-x)\cos\theta+\omega_{\rm p}\cos\theta. \tag{2}$$

根据线性模式转换机制[14], 当 $k=0$ 且 $\omega=\omega_{\rm p}$ 时, 等离子体中的纵波和横波具有相同的频率和波数, 静电振荡可有效转换为电磁辐射. 由 (2) 式可知, 这种模式转换仅可能发生在当 $\partial\omega_{\rm p}/\partial x>0$ 时, 即当电子束从低密度区向高密度区传输过程中, 对应激发的辐射具有和当地等离子体静电振荡相同的频率. 之后 CWE 机制产生的电磁波模被等离子体反射, 随激光离开相互作用区. 该辐射过程以激光周期重复发生, 产生的电磁波模频率为激光频率的整数倍[15], 也即激光的高次谐波. 对反射光进行滤波处理即可得一串阿秒脉冲.

对于固体密度的等离子体靶, CWE 辐射可产生的最大光子能量通常介于 20—40 eV 之间, 辐射强度取决于电子束的密度和振荡幅度, 与靶的密度分布、入射角、激光强度等因素均有关系. 在有效参数范围内, 等离子体的振荡幅度正比于激光强度, 因此这种基于线性模式转换产生的谐波, 其强度也正比于激光强度, 通常 10 阶谐波的能量转换效率约为 10^{-3}—10^{-4}. 在同一阿秒脉冲内, 由于高阶谐波的辐射时间落后于低阶谐波, 因此 CWE 阿秒脉冲天然携带正啁啾, 其脉宽大于傅里叶变换极限. 此外, 由于激光强度、预等离子体尺度以及离子位置在相互作用过程中动态演化, CWE 阿秒脉冲并不是严格等周期辐射, 造成谐波谱的展宽甚至出现非平凡阶次谐波[16].

2.2 相对论振荡镜 (relativistically oscillating mirror, ROM)

当入射激光强度 I 达到相对论强度 $I\lambda^2>1.37\times10^{18}$ W·cm^{-2}·μm^2 时, 电子在激光电场中的横向振荡速度接近光速, 此时激光有质动力作用不可忽略. 靶表面趋肤深度以内的电子在激光有质动力和电荷分离产生的静电力共同作用下形成以近光速振荡的致密电子层. 1993 年, Wilks 等[17] 在相对论线偏振激光垂直照射等离子体的反射光中发现了奇次谐波. 1994 年, Bulanov 等[18] 系统研究了这一作用过程, 发现斜入射条件下, P 偏振激光可激发更强的谐波信号, 同时提出谐波产生的原因在于激光被振荡运动的等离子体边界反射时引入的多普勒效应. 1996 年, Lichters 等[13] 将研究范围进一步拓展至任意偏振任意入射角条件下, 揭示出靶面的周期纵向运动是谐波产生的关键所在, 并建立了谐波偏振的选择定则, 如表 1 所列. 2004 年, Gordienko 等[19] 根据振荡镜的运动特征和理想镜面边界条件给出了普适的谐波谱理论定标率, 即对于阶次 $n<4\gamma_{\rm max}^2$ 的谐波, 其强度 I_n 满足幂律分布 $I_n\propto n^{-p}$, 更高阶次的谐波其强度将指数衰减. 这一分界点所对应的频率称为截止频率, $\gamma_{\rm max}$ 为靶面振荡的最大相对论因子. 根据该理论, 在相对论强

激光 ($I > 10^{20}$ W/cm^2) 的驱动下, 幂指数 p 可达到5/2, 这一预测很快得到了实验验证[20]. 2006 年, Baeva 等[21] 基于相对论自相似理论进一步证实了高次谐波幂次-指数分布的频谱特征, 同时提出由于等离子体镜相对论因子γ在辐射发生点附近迅速达到峰值, 谐波截止阶数与强度衰减因子应分别修正为$\sqrt{8\alpha_0}\gamma_{\max}^3$和8/3, 其中$\alpha_0$为辐射发生时与靶面振荡速度相关的常数. 至此, ROM 模型基本建立, 图 4 给出了一维粒子模拟中 ROM 机制下典型的谐波辐射过程和辐射特性, 这里采用强度为7.7×10^{21} W/cm^{2}的800 nm激光正入射初始电子密度为$250n_c$的等离子体靶, 靶表面没有预等离子体分布.

表 1 谐波偏振的选择定则

Table 1. Selection rules for polarization of harmonics.

入射激光偏振方向	奇次谐波	偶次谐波
P	P	P
S	S	P
正入射线偏振L	L	—
正入射圆偏振C	—	—

注: P, S分别表示P极化和S极化激光, L表示线偏振光, C表示圆偏振光.

ROM 辐射模型将复杂的非线性辐射过程分析简化为对辐射点附近靶面运动的研究, 不仅准确预测了谐波谱的主要特征, 同时深刻揭示了谐波辐射的关键物理原因. 在 ROM 模型中, 反射点$x_{\rm ARP}$处入射光$E_{\rm i}$(沿 x 轴正方向入射) 和反射光$E_{\rm r}$满足[21]:

$$E_{\rm i}\left(t-\frac{x_{\rm ARP}(t)}{c}\right)+E_{\rm r}\left(t+\frac{x_{\rm ARP}(t)}{c}\right)=0, \tag{3}$$

因此反射光的相位被靶面运动所调制, 其傅里叶变换为

$$E_{\rm r}(\omega)=-\int E_{\rm i}\left(t-\frac{x_{\rm ARP}}{c}\right)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega(t+x_{\rm ARP}/c)}\times\left(1+\frac{\dot{x}_{\rm ARP}}{c}\right)\mathrm{d}t. \tag{4}$$

对于 (4) 式的积分, 只有稳相点附近才有贡献, 即满足$\mathrm{d}(t+x_{\rm ARP}/c)/\mathrm{d}t=0$. 此时反射点的振荡速度$\dot{x}_{\rm ARP}\approx -c$ (c为真空光速), 其位置可近似表示为$x_{\rm ARP}(t)\approx -v_0t+\alpha_0t^3/3$, 将之代入 (4) 式可得: $I_n\propto n^{-8/3}$.

2.3 相干同步辐射 (coherent synchrotron emission, CSE)

2010 年 An der Brügge 和 Pukhov[22] 发现, 在某些参数条件下, 镜面反射条件在相对论强度激光与等离子体靶相互作用中失效, ROM 机制不再适用. 此时反射场最大值相比入射场高出一个数量级, 谐波谱呈现比 ROM 机制更缓的幂律特征. 因此他们提出了一个新的辐射机制——相干同步辐射 (CSE). 与 ROM 过程类似, CSE 的谐波辐射发生在靶面电子与入射光相向对撞的过程中, 但谐波起源于脱离靶体表面的致密纳米电子层在激光场驱动下的同步辐射, 而不是振荡反射镜对入射光的相位调制.

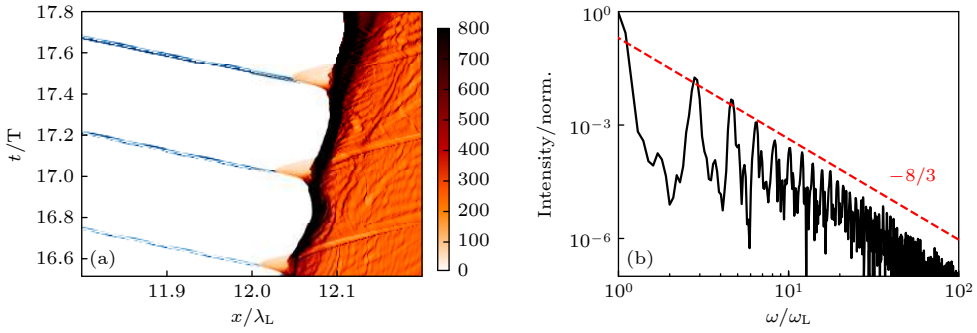

图 4 一维粒子模拟中获得的典型 ROM 机制的谐波辐射过程和辐射特性 (a) 电子密度分布随时间的变化, 蓝色部分为对应时刻产生的频率介于 15—150 倍频之间的高次谐波; (b) 反射光的频谱分布, 红色虚线为理论预测的标度率 $I_n\propto n^{-8/3}$. 这里强度为 7.7×10^{21} W/cm^2 的 800 nm 激光正入射初始电子密度为 $250n_c$ 的等离子体靶, 靶表面无预等离子体

Fig. 4. Typical harmonic radiation process and radiation characteristics of ROM mechanism from 1D PIC simulation: (a) Temporal evolution of electron density, and the bule part is the high-order harmonic of the corresponding time with frequency between 15ω–150ω; (b) spectrum of the reflected laser, and the dashed red line is the prediction of theory $I(\omega)\propto\omega^{-8/3}$. Here, the incident laser iradiates the target normally, the intensity and wavelength of which are 7.7×10^{21} W/cm^2 and 800 nm respectively. The electron density of the target is $250n_c$ and there is no preplasma.

假设电子层的位置为 $x_e(t)$, 产生的电流为 $j(t,x)=j(t)f(x-x_e(t))$, 其中 $f(x-x_e(t))$为电流分布的形状因子. 根据波动方程, 反射光电场的傅里叶变换结果为

$$E_r(\omega)=\frac{2\pi}{c}\int j\left(t-\frac{x}{c}\right)f(x-x_e(t))e^{-i\omega t}dt. \quad (5)$$

由于高频辐射发生在电子层纵向速度最大的瞬间, 若此刻电流方向发生了改变, 即 $j(t)=\alpha_1 t$ 且 $x_e=-v_0t+\alpha_0t^3/3$, 可得反射光频谱满足:

$$I_n\propto|\tilde{f}(n)|^2n^{-4/3}, \quad (6)$$

这里 $\tilde{f}(\omega)$是电流形状因子的傅里叶变换结果. 类似地, 若辐射过程中电流方向不变, 且电子位置的三阶导数为 0, 即 $j(t)=\alpha_1t^2$, $x_e=-v_0t+\alpha_0t^5/5$, 则谐波谱满足:

$$I_n\propto|\tilde{f}(n)|^2n^{-6/5}. \quad (7)$$

在 CSE 机制中, 致密纳米电子层的产生使得电流形状因子可视作 $\delta(x-x_e)$, 因此其谐波谱满足 $I_n\propto n^{-4/3}$或$n^{-6/5}$. 由于 CSE 谐波是电子层中所有电子同步辐射叠加后的宏观结果, 其谱宽不仅与电子层的速度有关, 还与电子层的相干性, 即电子层的束宽相关. 对于某个波长的辐射, 当电子层的宽度大于其波长的一半时, 该辐射以及比之波长更短的辐射由于非相干叠加强度迅速下降.

根据 (6) 式和 (7) 式可知, CSE 是一种比 ROM 更为高效的谐波辐射机制, 在 100 阶次附近, CSE 机制的谐波辐射效率比 ROM 机制出高 2 个数量级. 此外, 由于谐波来自电子层的同步辐射, 因此可同时在反射和透射方向产生高次谐波[23,24]. 这也是它区别于 ROM 机制的又一特点. 但是 CSE 机制对激光和靶的参数极其敏感, 并不是一个皮实的辐射过程. 图 5 给出了一维粒子模拟中获得的 CSE 机制下典型的谐波辐射过程和辐射特性, 模拟中采用强度为 7.7×10^{21} W/cm^{2}的 800 nm 激光以 63°角斜入射预等离子体尺度为 0.033λ, 最大电子密度为 $95n_c$的等离子体靶.

除了以上三种目前领域内公认的谐波辐射机制, 关于等离子体中谐波辐射的物理模型还有很多, 如 Gonoskov 等[25] 提出的相对论电子弹簧模型 (relativistic electronic spring); Pirozhkov 等[26] 提出的滑镜模型 (the sliding mirror); Kulagin 等[27] 提出的相对论电子镜模型 (relativistic electron mirror) 等, 由于篇幅限制不再介绍.

3 研究进展

高次谐波和阿秒脉冲的产生为人类打开了通往原子-亚原子超快世界的大门, 其具体应用范围取决于自身的特性. 下面从辐射效率、偏振特性、相位特征、孤立阿秒脉冲的产生和诊断技术发展等方面介绍强激光与稠密等离子体相互作用产生高次谐波和阿秒脉冲辐射的研究进展.

3.1 辐射效率

提高谐波的辐射效率以实现高通量极紫外/软 X 射线阿秒脉冲的产生, 一直是超快光学领域

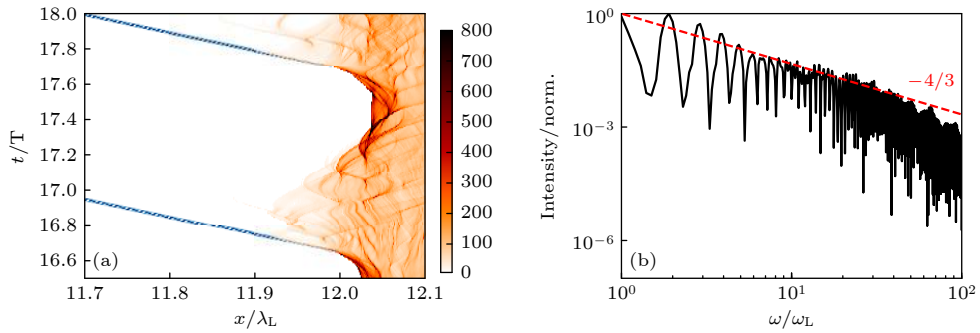

图 5 典型 CSE 机制的谐波辐射过程和辐射特性 (a) 电子密度分布随时间的变化, 蓝色部分为对应时刻产生的频率介于 15—150 倍频之间的高次谐波; (b) 反射光的频谱分布, 红色虚线为理论预测的标度率 $I_n\propto n^{-4/3}$. 这里强度为 7.7×10^{21} W/cm^{2}的 800 nm 激光以 63°角斜入射预等离子体尺度为 0.033λ, 最大电子密度为 $95n_c$ 的等离子体靶

Fig. 5. Typical harmonic radiation process and radiation characteristics of CSE mechanism. (a) Temporal evolution of electron density, and the bule part is the high-order harmonic of the corresponding time with frequency between 15ω–150ω; (b) spectrum of the reflected laser, and the dashed red line is the prediction of theory $I(\omega)\propto\omega^{-4/3}$. Here, a laser with intensity of 7.7×10^{21} W/cm^2 is incident on a plasma target with preplasma scale length of 0.033λ and the maximum electron density of $95n_c$ at an angle of 63°. Here $\lambda=800$ nm is the wavelength of lasers.

的前沿热点问题之一, 决定着阿秒脉冲的实用化进程. 由辐射机理可知, 电子层的品质, 尤其是其密度、宽度和能量等参量对谐波辐射效率起着至关重要的作用. 在稠密等离子体中, 激光只能作用在靶面纳米量级的趋肤深度内, 辐射电子层具有高密度、高相干度的优点, 但指数衰减的激光能量使得电子层难以获得有效加速. 因此, 提高谐波转换效率的关键在于实现激光和靶之间高效的能量耦合.

Pirozhkov 等[26] 发现在相同激光条件下, 低密度靶可有效吸收激光能量, 实现对电子层能量的增益. 北京大学乔宾团队[28] 发现相对论近临界密度靶可产生比固体密度靶更高效率的谐波信号. Thaury 和 Quéré[29] 发现, 在一定参数范围内, 提高驱动激光的强度可显著增益谐波的辐射效率, 但随着激光强度超过 10^{20} W/cm^2, 离子的响应使电子振荡速度减小, 谐波增益效果逐渐减弱直至饱和. 对此, Edwards 等[30] 进行了细致研究, 发现当激光的归一化电场强度 a_0 和靶的归一化密度 N 的比值满足 $a_0/N < 0.5$ 时, 谐波频谱的幂指数 p 大致等于 $2\ln(N/a_0)+C$, 其中 C 为常数. 当 $a_0/N \approx 0.3$ 时, p 达到最小值 4/3, 这一结果与 CSE 的理论预测一致.

实际上, 由于激光预脉冲的烧蚀, 靶前不可避免会有预等离子体分布. Tarasevitch 等[31] 发现, 当激光电场强度 $a_0 \approx 1$ 时, 随着预等离子体尺度从 0 逐步增加至 0.2λ, 谐波产生机制从 CWE 逐步转换至 ROM. Rödel 等[32] 通过实验研究发现, 等离子体靶密度越大、密度梯度越陡, 激光在趋肤深度内衰减越迅速、靶面弹性系数越大, 使得靶面电子层很难加速到高 γ, 因此提出引入预等离子体可提高谐波的辐射效率. Dollar 等[33]研究发现过长的预等离子体会引发参量不稳定性, 大幅降低谐波的相干性, 指出最佳预等离子体尺度约 $\lambda/(2\pi)$. 此后经过大量的数值模拟和实验研究得出[32–34], 最佳的预等离子体尺度在 0.1λ—0.2λ 范围内. 上海交通大学 Gao 等[35] 利用 200 TW 飞秒激光装置也进行了相关实验研究, 发现较短预等离子体中产生的电子层能量低但数密度高, 而较长的预等离子体中则恰好相反, 基于此提出在谐波辐射中存在两个最优预等离子体密度标长, 它们分别位于 0.1λ 左右. 此外, 他们还提出对于预等离子体密度标长大于 0.2λ 的情形, 为减少激光在低密度等离子体中的能量沉积, 可在一定密度处截断预等离子体, 使谐波辐射效率得到数量级提升的同时, 有效抑制其角散[36].

激光和靶之间的能量耦合效率还受到入射角的影响. 研究表明, 在斜入射条件下, 线偏振激光驱动产生高次谐波的最佳入射角约 55°, 且由于 P 极化激光沿靶法向方向的电场分量可助益靶面进行更剧烈的周期振荡, 因此, 可激励比 S 极化激光更强的谐波信号. 此外, 圆偏振激光在斜入射条件下也可有效驱动靶面振荡, 产生椭圆偏振的高次谐波, 而且随着入射角增大, 辐射效率可超过相同能量的线偏振激光.

此外, 还有很多提高辐射效率的创新物理方案. Edwards 和 Mikhailova[37] 发现双色激光驱动可将阿秒脉冲的辐射强度提高一个数量级, 而后他们通过遗传算法得出, 产生谐波的最优激光应具有从包络频率到相对论等离子体振荡频率之间的频谱带宽, 此时谐波辐射效率可高达 10%. 国防科大徐新荣等[38] 提出厚度 d_0、电子数密度 n_e 满足 $a_0 n_c/(2\pi n_e) \leqslant d_0/\lambda \leqslant a_0 n_c/(\pi n_e)$ 的纳米薄膜靶, 可在激光峰值作用周期内得到整体同步加速的同时维持周期振荡的运动形式, 使得辐射效率提高两个数量级. 北京大学乔宾团队[39] 提出了基于双色激光和纳米薄靶的双色靶破门技术, 通过叠加相位差为 π, 能占比为 0.1 的基频和倍频场, 阿秒脉冲的强度提高了近 40 倍. 2010 年 Lavocat-Dubuis 和 Matter[40] 发现, 光栅靶不仅能够对谐波频谱和空间分布进行调控, 辐射效率也可得到一定程度的增益. 随后 Cerchez 等[41] 进行了相关实验验证.

3.2 偏振特性

偏振是电磁波的一个基本性质, 产生偏振可调可控的谐波可进一步拓宽阿秒脉冲的应用范围, 获得对诸如原子吸收边特性、电子自旋-轨道角动量耦合、瞬态磁畴演化等过程更深刻全面的认识, 推动相关理论突破和技术革新. 高次谐波一般继承了驱动激光的偏振特性, 早期研究发现随着激光椭偏度的增大, 谐波辐射效率迅速下降, 因此在很长一段时间里, 谐波的研究主要集中于线偏振态. 2011 年, 吉亮亮等[42] 利用相对论少周期圆偏振激光辐照数倍临界密度等离子体靶, 发现在作用后期, 由于激光有质动力突然减小, 靶面发生单次振荡, 最终实现了孤立的圆偏振阿秒脉冲辐射, 且辐射效率接近于 ROM 模型的理论最佳. 2016 年, 陈自宇和 Pukhov[43] 发现斜入射条件下, 椭圆偏振激光可有效驱动谐波辐射, 并提出了基于等离子体镜

模型产生高亮度偏振可调控的高次谐波辐射新途径. 2020 年北京大学乔宾团队[44]提出了利用双色线偏振光斜入射激励圆偏振阿秒脉冲辐射的方案, 该方案可有效避免圆偏振激光产生过程中的能损问题, 大幅降低了圆偏振阿秒脉冲实验探索的难度.

近几年, 为满足自旋-轨道角动量相互作用以及微观力学操作的研究需求, 科研人员开始探索携带轨道角动量的涡旋阿秒脉冲辐射方案. 中国科学院上海光学精密机械研究所张晓梅等[45]于 2015 年首次进行了相对论涡旋激光驱动下谐波辐射的理论研究, 借助粒子模拟程序发现谐波携带的角量子数是驱动激光的阶次倍, 证实了相互作用过程满足角动量守恒. 2017 年 Denoeud 等[46]对此进行了实验研究, 成功得到了 CWE 和 ROM 涡旋谐波信号, 证实了涡旋阿秒脉冲的实验可行性. 2020 年, 中国科学院上海光学精密机械研究所王精伟等[47]发现通过等离子体, 相对论圆偏振激光的自旋角动量可有效转换为反射光的轨道角动量, 探索出了产生涡旋高次谐波的新技术方案, 该方案突破了实验室高强度涡旋光难以产生的限制, 为相对论涡旋阿秒脉冲的产生提供了可能.

3.3 相位特征

相位是衡量谐波品质的重要参量之一. 具体而言, 谐波的时间相位和空间相位分别决定了阿秒脉冲的脉宽和发散角. 在 CWE 机制中, 高次谐波产生于等离子体不同密度处, 高阶谐波的辐射位置离靶面较远, 从激发到传输至靶外的时间较长, 因此 CWE 谐波在阿秒时间尺度携带正啁啾, 对应合成的脉冲宽度大于傅里叶变换极限[48]. 此外, 由于激光一般具有高斯形状的时间包络, 不同作用时刻激光强度不同, 导致 Brunel 电子的纵向振幅不同. 激光强度越大, Brunel 电子振荡速度越快, 辐射越早发生. 因此, 相邻两个周期阿秒脉冲的时间间隔逐渐增大, 在阿秒链谱中引入负啁啾. 同理, 横向强度呈高斯形状分布的激光, 对靶面不同位置施加的光压不同, 导致电子具有不同的运动速度, 从而产生横向弯曲的电子束, 激发弯曲波前的高次谐波, 最终使得阿秒脉冲具有较大的发散角. 相较而言, ROM 和 CSE 高次谐波均发生自靶面电子层以最大速度整体向外运动的短暂瞬间, 与激光电场严格锁相, 因此这两种机制产生的谐波在阿秒时间尺度内均可认为无啁啾. 但与 CWE 过程类似, 激光强度的时空不均匀性使得这两种辐射机制也无法避免存在飞秒尺度的时间啁啾和空间啁啾, 且这两类啁啾在低密度靶或有预等离子体分布的靶中表现尤为明显. 此外, 当驱动激光本身携带啁啾或作用过程中离子运动不可忽略时, 三种辐射机制产生的阿秒脉冲也会存在啁啾, 使得谐波谱展宽或发生频移.

高次谐波的时间相位补偿比较容易实现. 对于阿秒时间尺度的相位啁啾, 可采用合适的薄膜材料补偿; 飞秒时间尺度的相位啁啾, 可通过驱动激光的啁啾补偿[49]. 实验上谐波空间相位补偿是一个难题. Quéré 等[49]通过激光离焦, 实现了激光波前对谐波波前的补偿. 但该方法只能补偿球面波前, 无法完成对高斯激光激励的高次谐波波前畸变的补偿. Hörlein 等[50]提出利用微结构靶补偿高次谐波弯曲波前的物理方案, 但是如何制作匹配激光强度分布的微结构靶仍是一个技术难题, 且当激光光轴偏离微结构中心入射时还会引入额外的像差. 上海交通大学 Gao 等[51]发现通过控制预脉冲的焦斑形状和大小, 可实现对高次谐波的聚焦和波前的调控, 例如: 环形预脉冲产生的凹陷预等离子体可以聚焦高次谐波; 改变预脉冲焦斑的大小可控制预等离子体凸起的曲率, 进而达到控制高次谐波发散角的目的.

3.4 孤立的阿秒脉冲

在强激光驱动下, 等离子体靶面每振荡一次, 反射方向就会有一个阿秒脉冲产生. 对于实验室常见的线偏振飞秒激光, 脉宽通常为几十飞秒, 包含多个振荡光周期, 因此驱动产生的阿秒脉冲呈链式辐射, 且相邻脉冲之间仅间隔飞秒. 当研究的微观动力学过程比脉冲间隔更长时, 这种高重频的阿秒脉冲将无法实现精准的探测和控制. 因此探索如何产生孤立的阿秒脉冲是阿秒科学研究的关键问题之一.

在线偏振激光驱动下, 阿秒脉冲的个数取决于激光脉宽, 因此缩短泵浦激光脉宽到周期量级有利于孤立阿秒脉冲的产生. Heissler 等[52]通过数值模拟发现, 在 8 fs (对应三个光周期) 激光驱动下产生孤立阿秒脉冲的概率约 17%, 当脉宽进一步缩短至 5 fs (两个光周期) 时, 产生概率可增加到 50% 以上, 这时候影响概率大小的关键因素是激光的载波包络相位. 对于少周期激光, 载波包络相位的微小

移动可导致激光振荡电场的剧烈变化, 而高次谐波的辐射过程强烈依赖于作用在靶面的瞬时激光强度. 当载波包络相位为 0 时, 激光峰值电场与相邻电场的幅值差异最大, 对应光周期内可产生谱最宽、强度最高的高次谐波, 通过选取超连续谱波段滤波即可得到孤立的阿秒脉冲. 如果载波包络相位发生移动, 导致峰值电场与相邻电场的幅值相近, 则无法通过此方案产生孤立的阿秒脉冲. 因此, 该方案成功的关键在于如何产生载波包络相位稳定的少周期激光.

谐波的辐射效率除了与激光强度有关外, 对激光的偏振态也非常敏感. 模拟和实验均表明 [53,54], 正入射下随着激光椭偏度的增加, 谐波辐射效率陡然下降. 当激光椭偏度增大为 1 达到圆偏振时, 谐波辐射过程则被完全抑制. 基于此, Rykovanov 等[53] 提出偏振门 (polarization gating) 技术: 采用一束偏振随时间“圆-线-圆”变化的特殊激光, 通过控制线偏的宽度即可实现单次谐波辐射 . 陈自宇等[55] 发现在大角度下, 谐波辐射效率与激光椭偏度之间的关系与正入射条件下正好相反. 因此提出了“线-圆-线”这样的偏振门方案, 实现了椭圆偏振的孤立阿秒脉冲辐射. 需要注意的是, 偏振门技术也倾向于选择少周期激光驱动, 这不仅可以保证阿秒脉冲的单发辐射, 同时也保障了一定的谐波转换效率.

除了控制高次谐波的辐射时间外, 孤立阿秒脉冲的产生还可通过控制其辐射方向, 实现脉冲链的空间分离. Naumova 等[56] 研究发现, 紧聚焦激光与微稠密等离子体相互作用时, 靶面形变剧烈, 且相邻半周期靶面指向不同方向, 可实现阿秒脉冲链的角向分离. 类似地, Vincenti 和 Quéré[57] 提出了灯塔方案 (attosecond lighthouses). 不同的是, 这里通过引入空间啁啾使得激光波前发生旋转, 从而控制靶面法向随时间改变, 最终将不同时刻产生的阿秒脉冲反射到不同位置. Wheeler 等[58] 对此进行了实验尝试, 在微通道板上测到了空间分离的极紫外光束, 且相邻两个子束之间的平均角距约 50 mrad. 对于以上两种方案, 只有当相邻靶面法向旋转角大于谐波的发散角时才可成功将阿秒脉冲链实现空间分离, 因此这些方案也要求驱动激光的脉宽在周期量级, 但无需固定载波包络相位.

尽管目前人类已经掌握了产生载波包络相位稳定的相对论少周期飞秒激光技术[59,60], 但这些技术仅限于少数几个实验室, 这就促使人们探索利用多周期激光实现孤立阿秒脉冲的新方案. 陈自宇[61] 发现, 当预等离子体较长时 ($L > \lambda/(2\pi)$), 在激光驱动过程中, 前期振荡电子层可获得有效压缩和加速, 而后期由于参量不稳定性等过程发生, 电子层形变严重, 密度和相干度极大降低. 在电子层密度、宽度和能量达到最优时产生的谐波具有最宽的频谱, 选择合适频段滤波即可得到孤立的阿秒脉冲. 这种方法同样也适用于产生椭圆偏振的阿秒脉冲. 北京大学乔宾团队[62] 也对此进行了系列研究. 他们提出电容器靶方案, 通过匹配激光和靶参量, 使得在激光峰值强度附近电容器快速完成充放电, 实现对谐波辐射效率的单次有效增益, 从而产生了孤立的阿秒脉冲; 他们还发现在激光和双纳米靶的相互作用过程中[63], 激光可慢慢穿透前靶, 并将能量存储在两靶之间, 当前靶电子在激光驱动下以近光速向后靶运动时, 存储的能量被电子层剧烈压缩, 可在透射方向产生高强度的孤立阿秒脉冲.

3.5 诊断技术发展

在将阿秒脉冲应用于超快探测和控制以前, 需完成对阿秒脉冲频域和时域性质的表征和测量. 但由于阿秒脉冲极短的脉宽和极高的光子能量, 飞秒脉冲的测量方法难以直接应用于阿秒脉冲中, 因此如何实现对阿秒脉冲频域的表征和时域的诊断是实验室亟需解决的核心问题.

阿秒脉冲包含了从极紫外到软 X 射线波段的高能光子, 该谱段的辐射可被大部分介质强烈吸收, 很难引起可测量的非线性效应. 因此亟待发展对应该频段的光谱诊断仪器. 通常阿秒脉冲的频谱可利用软 X 射线光栅光谱仪进行测量, 该谱仪主要由狭缝、光栅、X 射线探测器和真空系统组成. 传统的软 X 射线谱仪要求光源、分光面以及成像面严格按照罗兰圆安放, 这样常用的探测器, 如电荷耦合器、微通道板以及条纹相机等无法与之耦合. 为更好地与平面探测器匹配, 需要对光栅进行特殊的结构设计, 如采用已商业化的球面变栅距平场光栅作为核心色散元件, 使色散后不同波长的软 X 射线聚焦于同一平面. 为增加反射效率, 软 X 射线谱仪采用掠入射方式, 同时加入超环面镜等前置光学系统来补偿像散, 并增加收集效率. 平场光栅有严重的高级衍射, 利用它进行阿秒频谱诊断前需用同步辐射束线输出的单色光进行预先标定, 目前鲜有详细标定数据的公开报道. 我国合肥同步

辐射光源能够连续输出能量为 30—250 eV 的单色光, 为标定光学元器件提供了良好的实验平台.

阿秒脉冲具有史无前例的时间尺度, 对其脉宽的测量通常有两类方法, 分别是自相关测量和互相关测量[64]. 在测量中, 阿秒脉冲被分成两束, 然后一起照射到合适的非线性介质上, 利用该介质对脉冲时域敏感的特点完成对脉宽的表征. 2009 年 Nomura 等[48] 将产生的两束极紫外辐射聚焦到氦气上, 估得单个脉冲的宽度约 0.9 ± 0.4 fs, 实现了对稠密等离子体中阿秒脉冲链的首次测量. 为产生可测量的非线性现象, 自相关测量要求阿秒脉冲具有足够的能量. 而实验中, 为提高光强, 驱动激光通常是紧聚焦的, 产生的阿秒脉冲具有较大发散角, 导致自相关测量成为一个艰巨的挑战. 此外, 自相关测量中需滤去可引发单光子离化的高频段辐射, 因此可测量的光子区域十分受限. 互相关测量的基本原理是将阿秒脉冲和红外强激光共同作用到非线性介质上, 通过不同延时下的光电子能谱或离子能谱反演获得阿秒脉冲的宽度信息. 互相关测量有多种测量手段, 如 Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts (FROG-CRAB), Reconstruction of attosecond beating by interference of two-photo transitions (RABBITT), Attosecond streak camera (ASC) 等. 其中 FROG 对链式或孤立脉冲的时域诊断均可适用; RABBITT 由于是根据不同延时下光电子能谱的边带振幅调制完成对脉宽的标定, 所以当奇偶次谐波均出现时, 该反演方法难以给出脉冲时域特征的有效信息; 而 ASC 方法则只能对孤立的阿秒脉冲进行宽度测量. 2012 年 Wheeler 等[58] 应用 FROG 方法对 CWE 谐波脉冲进行了宽度测量.

4 应用前沿

强激光等离子体相互作用产生的高次谐波和阿秒脉冲具有高峰值强度、高光子能量和宽光谱带宽的特点, 同时兼具阿秒量级的时间分辨率和原子量级的空间分辨率, 为实现对各物质形态内电子动力学行为的超快四维实时成像和调控提供了独特技术手段. 同时这一光源还可在实验室内创造出前所未有的超强电磁场、超高能量密度和超快时间尺度等综合性极端物理条件, 可促进量子电动力学、天体物理等领域的研究.

4.1 电子动力学过程研究

电子是一种基本粒子, 决定着物质的结构和特性. 阿秒脉冲是实现对电子动力学行为探测和调控的有力工具. 为触发原子内部电子运动, 通常要求阿秒脉冲具有μJ 量级以上的能量. 比如氦原子的双光子吸收需要强度为 10^{14}—10^{15} W/cm^{2}的阿秒脉冲[65], 铍原子 K 壳层的双光子电离需要中心光子能量为 110 eV、强度为 5×10^{16} W/cm^2 的阿秒脉冲[66]. 对微观瞬态过程进行阿秒量级的泵浦-探测研究时, 需要将孤立的阿秒脉冲分成两束, 对脉冲强度提出了更高的要求. 在这些应用领域, 等离子体中的高次谐波及阿秒脉冲相比气体高次谐波占有绝对的优势, 有望完成对电子的高分辨成像和高灵敏度控制, 并大幅拓展微观世界的研究范围, 推动物理、化学、生物、材料等领域的快速发展.

在物理领域, 电子的运动及其关联效应, 如电子隧穿、电荷转移、多电子俄歇衰变等, 是长久以来原子分子物理、凝聚态物理等方向的重要研究内容, 阿秒脉冲使得对电子进行全四维高清成像成为可能, 有助于推动基于电子的信息技术革命, 实现信息的高速存储和处理. 在化学领域, 由于阿秒脉冲具有高时间分辨和宽光谱特性, 可直接获取反应过程中电子和原子结构的信息, 完成对化学反应的实时跟踪; 同时阿秒脉冲还可通过控制电子行为, 实现人工可控的化学反应. 在生物医学领域, 水窗波段的高通量阿秒 X 射线相干光源为生物活体清晰成像和癌症早期诊断提供了独特的技术手段, 可从根本上揭示疾病发生的起因, 在微观层面实现疾病的诊断和治疗. 在材料领域, 阿秒脉冲可通过控制电子的转移过程, 改进光伏材料的能量转换性能, 加速人工光合作用、光催化等领域的发展.

4.2 相干衍射成像

相干衍射成像通过反演 X 射线在样品中的衍射图样实现对样品结构的重建, 是近二十年伴随自由电子激光技术发展而兴起的一种新型成像技术, 可实现对非晶体样品纳米级三维立体显微成像[67]. 这一成像技术要求 X 射线具有高亮度、短脉宽以及高光子能量, 以实现对样品的高分辨无损拍照. 相比于规模巨大、造价高昂的自由电子激光装置, 超短超强激光产生高次谐波这一小型紧凑、经济实惠的方式有望促进相干衍射成像技术的广泛应用.

科学家已用气体高次谐波进行了相关实验尝试, 证实了高次谐波在相干衍射成像领域的可行性和独特优势. 但这一光源的最大缺点是光子数目少, 单发衍射图样衬度太低. 2009 年, Ravasio 等[68]为克服这一问题, 利用焦距长达 5.5 m 的透镜聚焦激光, 而后传输至 10 cm 长的气体盒中激励高次谐波, 实现了 119 nm 的单发分辨成像. 但这些操作对实验稳定性、所需空间和调节精确度等方面提出了非常苛刻的要求. 而等离子体中, 焦耳量级的飞秒激光即可产生微焦量级的高次谐波[32], 因此更有潜力提供高质量的相干衍射成像. 但是等离子体中高次谐波的辐射能量随着谐波阶次增高而迅速降低, 比如 ROM 机制下高次谐波光谱满足 $I_n \propto n^{-8/3}$分布, 因此进行相干衍射成像时需在分辨率和衬度之间进行仔细权衡. 提高谐波的产生效率或集中更多的辐射能量于某一阶次谐波是未来将等离子体中的高次谐波应用于相干衍射成像的关键.

4.3 诊断极端物质状态

超强激光在等离子体中引起的高度非线性效应对于惯性约束聚变、新型加速器物理等领域的研究至关重要, 由于这些物理过程具有作用区域小、持续时间短的特点, 如何对其进行实时诊断也是长久以来的一个热点问题. 而这些过程伴随产生的高次谐波和阿秒脉冲天然携带着等离子体温度、密度、预等离子体尺度以及临界密度面 (激光反射面) 运动特征等丰富的信息, 为飞秒尺度内强场物理过程的诊断提供了一条可行的技术路线. 在这一方向, 科学家已经进行了先期探索. Malvache 等[69]发展了一套理论模型, 通过对 CWE 信号的光谱分析准确得出预等离子体的长度, 测量灵敏度高达 $\lambda/200$. Kormin 等[70]基于光谱干涉分析揭示了阿秒链中各脉冲之间的光谱相位差, 进而可以反演得出相互作用过程中靶面的畸变程度. 此外, 利用阿秒光源对快点火电子束成丝[71]、尾场加速[72,73]、等离子体团簇充电与非平衡态演化[74,75]等超快过程进行高分辨率探测的方案也被相继提出.

超强激光驱动的阿秒脉冲辐射光源还可用于对温稠密物质温度、密度进行 X 射线吸收谱诊断. 温稠密物质广泛存在于自然界和超强激光产生的高能量密度系统中, 对其热力学状态演化过程的研究和高时空分辨诊断是目前实验物理方面最具挑战性的研究之一, 对惯性约束聚变工程、高能量密度物理、实验室天体物理等领域的研究有重要意义. 早期的 X 射线精细结构谱 (X-ray absorption fine structure, XAFS)[76] 主要是对静态样品进行测量, 随着科学研究的需要, 对材料微观结构超快动力学的研究已成为发展趋势. 而 X 射线光源的脉宽是影响动态 XAFS 技术时间分辨率的重要因素. 同步辐射装置的建造和运转费用非常昂贵, 而且无法测量动态过程, 限制了动态 XAFS 技术的广泛应用. 强激光驱动的阿秒脉冲光源谱宽可覆盖极紫外到硬 X 射线波段, 且具有极强的谱连续发射强度和超高时间分辨, 可克服背景轫致辐射的干扰, 有望应用于高能量、高亮度和高时间分辨稠密等离子体的光谱学诊断中, 提高对高能量密度条件下的电子-离子能量交换、惯性约束聚变中靶丸的内爆压缩、中高 Z 金属材料的冲击压缩等超快动力学过程的诊断能力.

4.4 极端超强光场

高功率激光技术的发展为人类提供了前所未有的极端物理条件. 当激光峰值强度超过 2.3×10^{29} W/cm^2 时, 对应电场强度将突破 Schwinger 极限, 真空即可被极化并产生大量正负电子对[77], 引发众多新物理、新现象和新规律的探索和验证. 为在这一前沿科技领域取得领先地位, 国内外强激光研究机构纷纷开始建造 10 PW (1 PW = 10^{15} W) 级超强激光装置, 如欧盟的极端光学基础设施 (extreme light infrastructure, ELI) 项目和中国科学院上海光学精密机械研究所建造的上海超强超短激光装置 (Shanghai superintense ultrafast laser facility, SULF). 然而, 10 PW 激光聚焦后的峰值强度也只可达到10^{23} W/cm^2, 离 Schwinger 极限还差 6 个数量级. 进一步提高激光峰值功率需探索新的技术途径和物理方案.

激光能量周期瞬时压缩产生的高次谐波具有极短的波长, 产生阿秒脉冲的焦斑可压缩至纳米量级, 对应的聚焦电场强度可远超入射激光, 有望成为极端超强场产生的方案之一. Gordienko 等[78]通过理论分析得出, 电场强度为a_0的驱动激光与等离子体靶相互作用产生的高次谐波被相干聚焦后强度可以提高 a_0^3 倍. 这意味着以 10^{23} W/cm^2 ($a_0\approx100$) 的 10 PW 激光激励, 高次谐波的聚焦光强度即可接近 Schwinger 极限. 但由于高次谐波

辐射的波长非常短, 聚焦时会受到波前畸变、聚焦镜片的反射率和面型精度等因素的极大影响, 因此如何实现高次谐波的相干聚焦是一个巨大的实验挑战. 最近的一个理论工作提出, 超强激光光压引起的等离子体表面向内凹陷可自洽聚焦高次谐波[79], 这将大幅降低实验的难度.

5 总结与展望

激光器的发明为人类提供了前所未有的极端物理条件和全新实验手段. 随着强激光技术的发展, 实验室已可产生波长涵盖中红外、红外、可见光、紫外、X 射线波段的辐射光源, 脉冲宽度也从微秒、纳秒、皮秒、飞秒, 一直发展到现在的阿秒, 为人类进一步打开了通往操控电子微观世界的大门. 强激光等离子体相互作用驱动产生的高次谐波具有高转换率、高光子能量和高亮度等优点, 已被证实是获得高品质, 尤其是高亮度阿秒脉冲辐射的有效技术途径. 经过二十多年的发展, 强激光等离子体相互作用驱动高次谐波的主要辐射机制、关键激光与靶参数及辐射品质的标度率关系已基本厘清, 获得的阿秒脉冲品质也在不断提高, 国际上已有一些实验室利用这一辐射源开展了阿秒科学应用的相关研究. 我国在这一领域积累了一定的理论基础, 但实验研究尚处在初期阶段, 与国际存在一定的差距. 未来在强激光等离子体驱动高次谐波和阿秒辐射研究领域, 进一步增益辐射效率、多样化辐射特性、提高辐射品质仍是核心目标, 以此才能实现对微观瞬态过程更好的成像和控制. 器利而后工乃精. 基于强激光装置, 利用强场物理和非线性强激光等离子体相互作用物理获得高亮度、高光子能量的阿秒光源, 势必打通时空尺度壁垒, 开创科学实验的新范式, 引发物质科学、生命科学和信息科学等核心科技领域的创新和变革. 目前, 中国工程物理研究院和中国科学院上海光学精密机械研究所都已陆续建立了数拍瓦强激光装置, 并开展了多项物理实验. 这些已经国际领先的强激光装置, 为我国在阿秒科学领域获得原创性突破, 实现超越并引领国际研究提供了重要机遇.

参考文献

[1] Zewail A H 2000 *J. Phys. Chem* **104** 5660
[2] Paul P M, Toma E S, Breger P, Mullot G, Augé F, Balcou P, Muller H G, Agostini P 2001 *Science* **292** 1689
[3] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Zrabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
[4] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
[5] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
[6] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, Huppert M, Jordan I, Ardana-Lamas F, Wörner H J 2017 *Opt. Express* **25** 27506
[7] Wang X, Wang L, Xiao F, Zhang D, Lü Z, Yuan J, Zhao Z X 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
[8] Chini M, Zhao K, Chang Z H 2014 *Nat. Photonics* **8** 178
[9] Reduzzi M, Carpeggiani P, Kuhn S, Calegari F, Nisoli M, Stagira S, Vozzi C, Dombi P, Kahaly S, Tzallas P, Charalambidis D, Varju K, Osvay K, Sansone G 2015 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **204** 257
[10] Burnett N, Baldis H, Richardson M, Enright G 1977 *Appl. Phys. Lett.* **31** 172
[11] Carman R L, Forslund D W, Indel J M K 1981 *Phys. Rev. Lett.* **46** 29
[12] Quéré F, Thaury C, Monot P, Dobosz S, Martin P, Geindre J P, Audebert P 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 125004
[13] Lichters R, Meyer-ter Vehn J, Pukhov A 1996 *Phys. Plasmas* **3** 3425
[14] Sheng Z M, Mima K, Zhang J, Sanuki H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 095003
[15] Thaury C, Quéré F, Geindre J P, Levy A, Ceccotti T, Monot P, Bougeard M, Reau F, D' Oliveira P, Audebert P, Marjoribanks R, Martin P H 2007 *Nat. Phys.* **3** 424
[16] Varjú K, Mairesse Y, Carre B, Gaarde M B, Johnsson P, Kazamias S, Lopez-Martens R, Mauritsson J, Schafer K J, Balcou P H, L'Huillier A, Salieres P 2005 *J. Mod. Opt.* **52** 379
[17] Wilks S C, Kruer W, Mori W 1993 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **21** 120
[18] Bulanov S V, Naumova N M, Pegoraro F 1994 *Phys. Plasmas* **1** 745
[19] Gordienko S, Pukhov A, Shorokhov O, Baeva T 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 115002
[20] Dromey B, Zepf M, Gopal A, Lancaster K, Wei M S, Krushelnick K, Tatarakis M, Vakakis N, Moustaizis S, Kodama R, Tampo M, Stoeckl C, Clarke R, Habara H, Neely D, Karsch S, Norreys P 2006 *Nat. Phys.* **2** 456
[21] Baeva T, Gordienko S, Pukhov A 2006 *Phys. Rev. E* **74** 046404
[22] An der Brügge D, Pukhov A 2010 *Phys. Plasmas* **17** 033110
[23] Cousens S, Reville B, Dromey B, Zepf M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 083901
[24] Dromey B, Rykovanov S, Yeung M, Hörlein R, Jung D, Gautier D, Dzelzainis T, Kiefer D, Palaniyppan S, Shah R 2012 *Nat. Phys.* **8** 804
[25] Gonoskov A A, Korzhimanov A V, Kim A V, Marklund M, Sergeev A M 2011 *Phys. Rev. E* **84** 046403
[26] Pirozhkov A S, Bulanov S V, Esirkepov T Z, Mori M, Sagisaka A, Daido H 2006 *Phys. Plasmas* **13** 013107
[27] Kulagin V V, Cherepenin V A, Hur M S, Suk H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 124801
[28] Zhang Y X, Qiao B, Xu X R, Chang H X, Lu H Y, Zhou C T, Zhang H, Zhu S P, Zepf M, He X T 2017 *Opt. Express* **25** 23
[29] Thaury C, Quéré F 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 213001
[30] Edwards M R, Mikhailova J M 2020 *Sci. Rep.* **10** 5154
[31] Tarasevitch A, Lobov K, Wünsche C, von der Linde D 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 103902
[32] Rödel C, an der Brügge D, J Bierbach, Yeung M, Hahn T, Dromey B, Herzer S, Fuchs S, Pour A G, Eckner E, Behmke

M, Cerchez M, Jäckel O, Hemmers D, Toncian T, Kaluza M C, Belyanin A, Pretzler G, Willi O, Pukhov A, Zepf M, Paulus G G 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 125002
[33] Dollar F, Cummings P, Chvykov V, Willingale L, Vargas M, Yanovsky V, Zulick C, Maksimchuk A, Thomas A G, Krushelnick K 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 175002
[34] Leshchenko V E, Kessel A, Jahn O, Krüger M, Münzer A, Trushin S A, Veisz L, Major Z, Karsch S 2019 *Light Sci. Appl.* **8** 1
[35] Gao J, Li B, Liu F, Cai H, Chen M, Yuan X, Ge X, Chen L, Sheng Z, Zhang J 2019 *Phys. Plasmas* **26** 103102
[36] Li B Y, Liu F, Chen M, Chen Z Y, Yuan X H, Weng S M, Jin T, Rykovanov S G, Wang J W, Sheng Z M, Zhang J 2019 *Phys. Rev. E* **100** 053207
[37] Edwards M R, Mikhailova J M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 125001
[38] Xu X R, Qiao B, Yu T, Yin Y, Zhuo H, Liu K, Xie D, Zou D, Wang W 2019 *New J. Phys.* **21** 103013
[39] Zhang Y, Rykovanov S, Shi M, Zhong C, He X, Qiao B, Zepf M 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 114802
[40] Lavocat-Dubuis X, Matte J P 2010 *Phys. Plasmas* **17** 093105
[41] Cerchez M, Giesecke A, Peth C, Toncian M, Albertazzi B, Fuchs J, Willi O, Toncian T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 065003
[42] Ji L L, Shen B, Zhang X, Wen M, Xia C, Wang W, Xu J, Yu Y, Yu M, Xu Z 2011 *Phys. Plasmas* **18** 083104
[43] Chen Z Y, Pukhov A 2016 *Nat. Commun.* **7** 12515
[44] Zhong C L, Qiao B, Xu X R, Zhang Y X, Li X B, Zhang Y, Zhou C T, Zhu S P, He X T 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053814
[45] Zhang X M, Shen B, Shi Y, Wang X, Zhang L, Wang W, Xu J, Yi L, Xu Z 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 173901
[46] Denoeud A, Chopineau L, Leblanc A, Quéré F 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 033902
[47] Wang J W, Zepf M, Rykovanov S 2019 *Nat. Commun.* **10** 1
[48] Nomura Y, Hörlein R, Tzallas P, Dromey B, Rykovanov S, Major Z, Osterhoff J, Karsch S, Veisz L, Zepf M 2009 *Nat. Phys.* **5** 124
[49] Quéré F, Thaury C, Geindre J P, Bonnaud G, Monot P, Martin P 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 095004
[50] Hörlein R, Rykovanov S G, Dromey B, Nomura Y, Adams D, Geissler M, Zepf M, Krausz F, Tsakiris G D 2009 *Eur. Phys. J. D* **55** 475
[51] Gao J, Li B, Liu F, Chen Z Y, Chen M, Ge X, Yuan X, Chen L, Sheng Z, Zhang J 2020 *Phys. Rev. E* **101** 033202
[52] Heissler P, Hörlein R, Mikhailova J M, Waldecker L, Tzallas P, Buck A, Schmid K, Sears C, Krausz F, Veisz L 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 235003
[53] Rykovanov S G, Geissler M, Meyer-ter-Vehn J, Tsakiris G D 2008 *New J. Phys.* **10** 025025
[54] Yeung M, Dromey B, Cousens S, Dzelzainis T, Kiefer D, Schreiber J, Bin J, Ma W, Kreuzer C, Meyer-ter-Vehn J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 123902
[55] Chen Z Y, Li X Y, Li B Y, Chen M, Liu F 2018 *Opt. Express* **26** 4572
[56] Naumova N M, Nees J A, Sokolov I V, Hou B, Mourou G A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 063902
[57] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
[58] Wheeler J A, Borot A, Monchocé S, Vincenti H, Ricci A, Malvache A, Lopez-Martens R, Quéré F 2012 *Nat. Photonics* **6** 829
[59] Ouillé M, Vernier A, Böhle F, Bocoum M, Jullien A, Lozano M, Rousseau J P, Cheng Z, Gustas D, Blumenstein A, Simon P, Haessler S, Faure J, Nagy T, Lopez-Martens R 2020 *Light Sci. Appl.* **9** 1
[60] Kessel A, Leshchenko V E, Jahn O, Krüger M, Münzer A, Schwarz A, Pervak V, Trubetskov M, Trushin S A, Krausz F, Major Z, Karsch S 2018 *Optica* **5** 434
[61] Chen Z Y 2018 *Opt. Lett.* **43** 2114
[62] Xu X R, Zhang Y X, Zhang H, Lu H Y, Zhou W M, Zhou C T, Dromey B, Zhu S P, Zepf M, He X T, Bin Q 2020 *Optica* **7** 355
[63] 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. Controlled Fusion* **60** 045005
[64] Orfanos I, Makos I, Liontos I, Skantzakis E, F org B, Charalambidis D, Tzallas P 2019 *APL Photonics* **4** 080901
[65] Ishikawa K L, Midorikawa K 2005 *Phys. Rev. A* **72** 013407
[66] Orfanos I, Makos I, Liontos I, Skantzakis E, Major B, Nayak A, Dumergue M, Kühn S, Kahaly S, Varju K, Sansone G, Witzel B, Kalpouzos C, Nikolopoulos L A A, Tzallas P, Charalambidis D 2020 *J. Phys. Photonics* **2** 042003
[67] Miao J, Charalambous P, Kirz J, Sayre D 1999 *Nature* **400** 342
[68] Ravasio A, Gauthier D, Maia F, Billon M, Caumes J, Garzella D, Géléoc M, Gobert O, Hergott J F, Pena A M, Perez H, Carré B, Bourhis E, Gierak J, Madouri A, Mailly D, Schiedt B, Fajardo M, Gautier J, Zeitoun P, Bucksbaum P H, Hajdu J, Merdji H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 028104
[69] Malvache A, Borot A, Quéré F, Lopez-Martens R 2013 *Phys. Rev. E* **87** 035101
[70] Kormin D, Borot A, Ma G, Dallari W, Bergues B, Aladi M, Földes I B, Veisz L 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
[71] Meyer-ter-Vehn J, Honrubia J, Geissler M, Karsch S, Krausz F, Tsakiris G, Witte K 2005 *Plasma Phys. Controlled Fusion* **47** B807
[72] Matlis N H, Reed S, Bulanov S S, Chvykov V, Kalintchenko G, Matsuoka T, Rousseau P, Yanovsky V, Maksimchuk A, Kalmykov S, Shvets G, Downer M C 2006 *Nat. Phys.* **2** 749
[73] Hörlein R, Nomura Y, Osterhoff J, Major Z, Karsch S, Krausz F, Tsakiris G D 2008 *Plasma Phys. Controlled Fusion* **50** 124002
[74] Ramunno L, Jungreuthmayer C, Reinholz H, Brabec T 2006 *J. Phys. B* **39** 4923
[75] Saalmann U, Georgescu I, Rost J M 2008 *New J. Phys.* **10** 025014
[76] Rehr J J, Albers R C 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 621
[77] Schwinger J 1951 *Phys. Rev.* **82** 664
[78] Gordienko S, Pukhov A, Shorokhov O, Baeva T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 103903
[79] Vincenti H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 105001

SPECIAL TOPIC—Ultra short ultra intense laser plasma physics

Research progress of high-order harmonics and attosecond radiation driven by interaction between intense lasers and plasma*

Xu Xin-Rong [1)2)] Zhong Cong-Lin [2)3)] Zhang Yi [2)3)] Liu Feng [4)5)]
Wang Shao-Yi [6)] Tan Fang [6)] Zhang Yu-Xue [6)]
Zhou Wei-Min [6)] Qiao Bin [2)3)†]

1) (*Department of Physics, National University of Defense Technology, Changsha* 410073, *China*)

2) (*State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology* (*SKLNPT*), *School of Physics, Peking University, Beijing* 100871, *China*)

3) (*Ministry of Education Key Laboratory of High Energy Density Physics Simulation* (*HEDPS*), *Center for Applied Physics and Technology* (*CAPT*), *Peking University, Beijing* 100871, *China*)

4) (*Key Laboratory for Laser Plasmas of Ministry of Education, School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai* 200240, *China*)

5) (*Collaborative Innovation Center for IFSA, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai* 200240, *China*)

6) (*State Key Laboratory of Plasma Physics, Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang* 621000, *China*)

(Received 21 February 2021; revised manuscript received 28 March 2021)

Abstract

The realizing of the detection and control of ultrafast process conduces to understanding and remoulding the physical world at a microcosm level. The attosecond light source with attosecond temporal resolution and nanometer spatial resolution can realize real-time detection and manipulation of the atomic-scale electronic dynamics and relevant effects of the substances. Therefore, attosecond science is considered as one of the most important milestones in the history of laser science. and has been listed as an important scientific and technological development direction in the coming 10 years. High-order harmonic generation (HHG) from intense laser-matter interaction is one of the most important routes to breaking through the femtosecond limit and achieving brilliant attosecond pulse radiations, and thus having aroused great interest in recent years. After more than 20-year development, the research about attosecond pulse generation by laser-gas interaction has reached a mature stage. This method produces the shortest isolated pulse in the world to date, with a pulse width being only 43 as. However, this method based on ionization-acceleration-combination encounters inevitable difficulties in pursuing the relativistically intense attosecond pulses and the highest possible photon energy. Quite a lot of studies have proved that the HHG efficiency from laser-plasma interaction can be a few

* Project supported by the Science Challenge Project (Grant No. TZ2018005), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11825502, 11921006, 12004433), the Joint Fund of the National Natural Science Foundation of China and the China Academy of Engineering Physics (Grant No. U1630246), the Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDA25050900), the National Key R&D Program of China (Grant No. 2016YFA0401100), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant No. 2020JJ5649), and the Research Project of National University of Defense Technology, China (Grant No. ZK19-12).

† Corresponding author. E-mail: bqiao@pku.edu.cn

orders of magnitude higher than that in gaseous media, which makes it possible to produce pulses with shorter pulse width and higher photon energy. In this article, we introduce the main generation mechanisms, research progress and frontier applications of HHG through the laser-plasma interaction process. In Section 2, we introduce the HHG generation mechanisms, including coherent wake emission, which is used to describe the HHG process driven by a nonrelativistic laser; relativistic oscillating mirror, which can well explain most of HHG processes generated from plasma-vacuum interface in relativistic regime; coherent synchrotron emission, which is suited to explain the HHG synchronously emitted from isolated electron sheets. The research progress is summarized in Section 3 from the aspects of radiation efficiency, polarization characteristics, phase characteristics, generation and diagnosis of isolated attosecond pulses, etc. Frontier applications of these ultra-broadband intense attosecond pulses are presented in the last section, such as the study of electronic dynamics, process, coherent diffraction imaging, diagnosis of extreme states of matter, the generation of extremely intense fields, etc. Finally, an outlook on the future development trends and innovation breakthroughs is also presented.

Keywords: intense lasers, plasma, high-order harmonics, attosecond pulses

PACS: 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.38.–r **DOI:** 10.7498/aps.70.20210339