

分类号 O56

学号 09029016

UDC 539.1

密级 公开

理学博士学位论文

基于阿秒瞬态吸收光谱的电子超快动力学
实验研究

博士生姓名 王小伟

学科专业 物理学

研究方向 光谱技术及其应用

指导教师 袁建民 教授

 常增虎 教授

国防科学技术大学研究生院

二〇一四年二月

**Experimental study on electron ultrafast
dynamics with attosecond transient
absorption spectroscopy**

Candidate: Xiaowei Wang

Supervisor: Professor Jianmin Yuan

Professor Zenghu Chang

A dissertation

Submitted in partial fulfillment of the requirements

for the degree of Doctor of Science

in Atomic and Molecular Physics

Graduate School of National University of Defense Technology

Changsha, Hunan, P. R. China

February 23, 2014

独创性声明

本人声明所呈交的学位论文是我本人在导师指导下进行的研究工作及取得的研究成果。尽我所知，除文中特别加以标注和致谢的地方外，论文中不包含其他人已经发表和撰写过的研究成果，也不包含为获得国防科学技术大学或其他教育机构的学位或证书而使用过的材料。与我一同工作的同志对本研究所做的任何贡献均已在论文中作了明确的说明并表示谢意。

学位论文题目： 基于阿秒瞬态吸收光谱的电子超快动力学实验研究

学位论文作者签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日

学位论文版权使用授权书

本人完全了解国防科学技术大学有关保留、使用学位论文的规定。本人授权国防科学技术大学可以保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子文档，允许论文被查阅和借阅；可以将学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。

(保密学位论文在解密后适用本授权书。)

学位论文题目： 基于阿秒瞬态吸收光谱的电子超快动力学实验研究

学位论文作者签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日

作者指导教师签名： _____ 日期： _____ 年 _____ 月 _____ 日

目 录

摘 要	i
ABSTRACT	iii
第一章 绪 论	1
1.1 从飞秒走向阿秒	2
1.1.1 高次谐波与阿秒脉冲串	3
1.1.2 单个阿秒脉冲的产生	4
1.1.3 单个阿秒脉冲的测量	6
1.2 阿秒分辨的电子超快动力学实验技术	7
1.2.1 阿秒光电子谱技术	8
1.2.2 阿秒瞬态吸收光谱技术	9
1.3 阿秒科学技术在国内的研究现状	9
1.4 本文的主要内容	10
参考文献	11
第二章 高次谐波	21
2.1 飞秒激光脉冲与高次谐波实验	21
2.1.1 飞秒激光脉冲的基本性质	21
2.1.2 飞秒激光器	24
2.1.3 高次谐波实验	25
2.2 高次谐波的半经典理论	26
2.2.1 三步模型	26
2.2.2 原子在激光场中的电离	27
2.2.3 电子轨迹	30
2.2.4 高次谐波能量	32
2.3 相位匹配	33
2.3.1 平面波的相位匹配	35
2.3.2 高斯光束的相位匹配	38
2.4 基于氩气—氢气靶阵列的准相位匹配	40
2.4.1 实验装置	41
2.4.2 氩气和氢气的高次谐波	42
2.4.3 准相位匹配机理	44

参考文献	45
第三章 单个阿秒脉冲的产生与测量	51
3.1 单个阿秒脉冲的产生	51
3.1.1 偏振选通门	51
3.1.2 双光学选通门	54
3.1.3 各种方案的比较	57
3.2 单个阿秒脉冲的测量	58
3.2.1 FROG-CRAB	58
3.2.2 PROOF	60
3.3 单个阿秒脉冲的啁啾补偿	62
参考文献	65
第四章 阿秒瞬态吸收光谱技术	69
4.1 阿秒瞬态吸收光谱技术简介	69
4.2 阿秒瞬态吸收光谱实验系统	70
4.2.1 FAST 飞秒激光系统	70
4.2.2 单个阿秒的产生装置	73
4.2.3 阿秒脉冲的吸收	74
4.2.4 延时的锁定与控制	76
4.3 极紫外谱仪的设计与标定	79
4.3.1 极紫外平焦场光栅	79
4.3.2 极紫外谱仪的设计	81
4.3.3 极紫外谱仪的标定	83
4.4 阿秒瞬态吸收光谱的基本理论	89
4.4.1 吸收谱的计算	89
4.4.2 波函数的基矢展开算法	90
4.4.3 三能级系统的瞬态吸收光谱	91
参考文献	94
第五章 氦原子中电子的亚周期动力学	99
5.1 氦原子的能级结构	99
5.2 氦原子的瞬态吸收光谱	100
5.2.1 实验条件	100
5.2.2 氦原子吸收谱随红外激光光强的变化	102
5.2.3 氦原子吸收谱随延时的变化	103

5.3	瞬态吸收光谱的计算	108
5.4	氦原子瞬态吸收谱动力学过程分析	109
5.4.1	亚周期交流斯塔克效应	109
5.4.2	共振耦合	112
5.4.3	量子路径干涉	113
5.4.4	电离阈值的亚周期变化	117
	参考文献	118
第六章	氦原子与氢分子的瞬态吸收光谱	121
6.1	氦原子瞬态吸收光谱	121
6.1.1	氦原子能级	121
6.1.2	实验结果	122
6.1.3	氦原子瞬态吸收光谱的计算	124
6.1.4	瞬态吸收光谱的操控	127
6.2	氢分子瞬态吸收光谱	127
6.2.1	氢分子的势能曲线	128
6.2.2	实验结果及讨论	129
	参考文献	134
第七章	结束语	137
	致谢	139
	作者在学期间取得的学术成果	141

表 目 录

表 2.1	惰性气体相位匹配参数表	36
表 4.1	用来标定谱仪的能级	86
表 4.2	氩气自电离态的法诺线型参数	87
表 5.1	氦原子能级	100
表 5.2	氦原子电偶极矩矩阵元 $ d_{jk} $	100
表 6.1	氖原子能级	121

图 目 录

图 1.1	微观粒子运动的空间及时间尺度	1
图 1.2	高次谐波示意图	3
图 2.1	飞秒激光脉冲示意图	22
图 2.2	FEMTOPOWER COMPACT PRO 光路图	24
图 2.3	高次谐波实验装置图	25
图 2.4	高次谐波信号	26
图 2.5	高次谐波的“三步模型”	27
图 2.6	多光子电离与隧穿电离	28
图 2.7	激光场中原子的电离速率与电离概率	29
图 2.8	电子轨迹示意图	31
图 2.9	高次谐波产量随激光椭圆偏率的变化	32
图 2.10	电子的返回时间与电子动能	32
图 2.11	相位匹配示意图	34
图 2.12	考虑介质吸收时高次谐波强度的相位匹配	37
图 2.13	高斯光束的相位匹配	39
图 2.14	用氙气-氢气靶阵列实现准相位匹配	40
图 2.15	高次谐波产生与测量装置图	41
图 2.16	气体池中气压的测量	42
图 2.17	氙气和氢气高次谐波产量随压强的变化关系	43
图 2.18	氙气和氢气 19 次谐波产量和电离概率随光强的变化关系	43
图 2.19	氙气和氢气高次谐波产量随光强的变化关系	44
图 2.20	氢气与氙气光电离截面与谐波产量的比较	45
图 3.1	椭圆偏率随时间变化的电场	52
图 3.2	偏振选通门电场的构造	53
图 3.3	双光学选通基本原理	55
图 3.4	三种选通方案对气体电离的比较	56
图 3.5	GDOG 光路图 ^[13]	57
图 3.6	FROG-CRAB 谱图	60
图 3.7	阿秒脉冲固有啁啾的补偿	63
图 3.8	67 as 超短脉冲的测量结果	64
图 4.1	阿秒瞬态吸收光谱实验示意图	69

图 4.2	FAST 飞秒激光系统光路图	71
图 4.3	FAST 激光器放大级输出光束	72
图 4.4	5.4 fs 脉冲的 FROG 测量结果	72
图 4.5	单个阿秒产生装置	73
图 4.6	金属膜透射窗口及单个阿秒边续谱	74
图 4.7	阿秒瞬态吸收光谱技术的吸收装置	75
图 4.8	阿秒脉冲焦点的刀片法测量结果	76
图 4.9	延时的锁定与控制	77
图 4.10	绿激光干涉纹	78
图 4.11	延时的锁定与扫描	79
图 4.12	平焦场光栅示意图	80
图 4.13	平焦场光栅的焦平面随入射参数的变化关系	81
图 4.14	极紫外谱仪装置图	82
图 4.15	Zemax 光线追迹计算谱仪分辨率	83
图 4.16	谱仪标定实验结果	85
图 4.17	谱仪分辨率的确定	88
图 4.18	MCP 的量子噪声	88
图 4.19	氙原子的三能级系统瞬态吸收模型	91
图 4.20	延时为 -30 fs 时耦合方程的解	92
图 4.21	氙原子的三能级系统瞬态吸收谱随延时的改变	93
图 4.22	瞬态吸收谱振荡频率分析	94
图 5.1	氦原子能级示意图	99
图 5.2	氙气和氙气产生的连续谱的比较	101
图 5.3	氦的吸收光谱	102
图 5.4	氦原子吸光度随激光强度的变化	103
图 5.5	氦原子吸光度随延时的变化	104
图 5.6	氦原子 Floquet 边带能级的指认	105
图 5.7	吸光度的亚周期振荡	106
图 5.8	氦的吸光度随延时的变化 ($I_L = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)	107
图 5.9	氦原子瞬态吸收光谱的计算	108
图 5.10	1s3p 和 1s4p 能级的交流斯塔克效应	110
图 5.11	1s3p 和 1s4p 能级位置的亚周期改变	111
图 5.12	1s3p 和 1s4p 能级位置的亚周期改变	112
图 5.13	计算得到的氦原子 1s2p 能级 Autler-Townes 分裂	114

图 5.14 量子路径干涉	115
图 5.15 负延时处吸光度的振荡频谱	116
图 5.16 零延时处吸光度的振荡频率	116
图 5.17 激光诱导态 $2s^+$ 与 $2s^-$ 的吸光度随延时的周期调制	117
图 5.18 电离阈值的亚周期变化	118
图 6.1 氦原子能级示意图	122
图 6.2 氦原子的瞬态吸收光谱	123
图 6.3 氦原子吸收谱中的量子干涉	124
图 6.4 基矢展开法求解氦原子瞬态吸收光谱	125
图 6.5 计算得到的氦原子瞬态吸收光谱	126
图 6.6 瞬态吸收光谱的操控	128
图 6.7 氢分子激发态的势能曲线及振动能级	129
图 6.8 H_2 与 D_2 的透过率	130
图 6.9 低光强下 H_2 与 D_2 的瞬态吸收谱 (透过率) 随延时的变化	131
图 6.10 H_2 分子透射谱中振荡结构的频谱分析	131
图 6.11 高光强下 H_2 与 D_2 的瞬态吸收谱随延时的变化	132
图 6.12 H_2 及 D_2C 态透过率变化速率比较	133
图 6.13 H_2 及 D_2 的透过率在较大负延时处的变化	133

摘 要

本文围绕阿秒瞬态吸收光谱技术展开讨论。首先介绍了高次谐波产生的基本理论，并探讨了利用氩气-氢气靶阵列的准相位匹配技术来提高高次谐波转化效率的机制。其次介绍了从阿秒脉冲串中选取单个阿秒脉冲的各种选通技术，以及超宽带单个阿秒脉冲的测量方法，在此基础上，通过对阿秒脉冲进行光谱裁剪和色散补偿，成功获得了 67 阿秒的近傅里叶变换极限的超短脉冲。再次，详细介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的实验装置及基本理论。设计并搭建了高分辨率极紫外谱仪，并提出了精确的原位标定方法。再次，进行了氦原子的瞬态吸收光谱实验。在实验中观察到了亚周期交流斯塔克效应、Autler-Townes 分裂、量子路径干涉、激光诱导态以及电离阈值的亚周期变化等超快动力学过程。最后，进行了复杂原子体系（氦原子）及简单分子体系（氢分子）的瞬态吸收光谱实验。氦原子实验证明了单电子近似的瞬态吸收理论模型仍可适用于较为复杂的原子体系。同时，通过改变入射脉冲的光谱范围，我们能关闭量子干涉中的间接路径，展示了对超快动力学过程的操控能力。在氢分子的瞬态吸收谱中我们同时观测到了电子及原子核的动力学过程，是瞬态吸收光谱技术在分子体系中的首次尝试。

关键词: 高次谐波；准相位匹配；单个阿秒脉冲；极紫外谱仪；阿秒瞬态吸收光谱技术

ABSTRACT

In this thesis, attosecond transient absorption spectroscopy is demonstrated. Firstly, the basic theory of high-order harmonic generation are introduced and the mechanism of quasi-phase-matching in a dual-gas multijet array is investigated. Secondly, various gating technologies for singling an isolate attosecond pulse out of an attosecond pulse train, as well as the methods used to characterize ultrabroadband attosecond pulses are introduced. In addition, we successfully compressed isolated attosecond pulses down to 67 attosecond by tailoring their spectrum and properly compensating their intrinsic chirp. Thirdly, an attosecond transient absorption spectroscopy experimental system was developed, and the basic theory of attosecond transient absorption spectroscopy is introduced. In addition, we designed an extreme ultraviolet spectrometer with high resolution, which was calibrated by an in-situ calibration method proposed by us. Fourthly, attosecond transient absorption experiments with helium atoms were performed. We observed sub-cycle AC Stark shift, Autler-Townes splitting, quantum path interference, light induced structure and sub-cycle change of ionization threshold in the experiments. Fifthly, attosecond transient absorption experiments were performed with complex atomic systems (neon atoms) and molecular system (hydrogen molecules). Although direct numerical simulation of the ten-electron neon atom is still impossible, we demonstrate that the dynamics can still be interpreted through time-dependent Schrodinger equation simulations relying on the single active electron approximation. Furthermore, we experimentally demonstrated the ability to "turn off" the quantum interference by removing the indirect excitation pathway. In the transient absorption spectrum of hydrogen molecules, we observed both electronic and nuclear dynamics, and this is the first attosecond transient absorption experiment performed with molecular systems.

Key Words: High-order harmonic generation; Quasi phase matching; Isolated attosecond pulse; Extreme Ultraviolet spectrometer; Attosecond transient absorption spectroscopy

第一章 绪 论

电子在 20 世纪的科技革命中起着关键作用，虽然已被人们研究了一个世纪，但直到今天人们对原子尺度内电子的运动仍然知之甚少。这是因为在微观体系中，电子运动的时间尺度超出了任何探测技术的时间分辨极限。根据测不准原理，微观粒子在极小空间尺度上的局限性必然导致其动力学过程在时间上的超快性。一般而言，微观粒子运动的空间和时间尺度如图 1.1^[1] 所示，生成新物质的化学反应过程是一由系列发生在飞秒 (femtosecond, 1×10^{-15} s) 尺度上的物理过程组成的，而原子状态的演化则是由阿秒 (attosecond, 1×10^{-18} s) 尺度上的电子运动决定的。对这样的超快过程进行直接测量要求我们具有相同或者更短时间尺度上的探测工具。在摄影技术中，一个“快门”的时间可以曝光并记录下一个动作，动作发生的时间越短，需要记录它的“快门”就相应地要求越短，否则图像就会出现虚影。但微观粒子运动的时间尺度是任何机械或者电子快门都难以达到的。激光的出现为人们提供了一种全新的工具，尤其是激光锁模技术^[2,3] 的发明，促进了超短飞秒激光脉冲的诞生^[4-8]，为人们在飞秒尺度的时间分辨率上研究超快动力学提供了可能。利用飞秒泵浦—探测技术，人们成功地控制了化学键的成键与断裂，并前所未有地观察到了化学反应的中间过程^[9,10]。从事该工作的 Ahmed Zewail 教授也因此获得 1999 年诺贝尔化学奖。但若要在时间上分辨原子分子内部电子的动力学过程，就需要比飞秒更短的激光脉冲—阿秒脉冲。

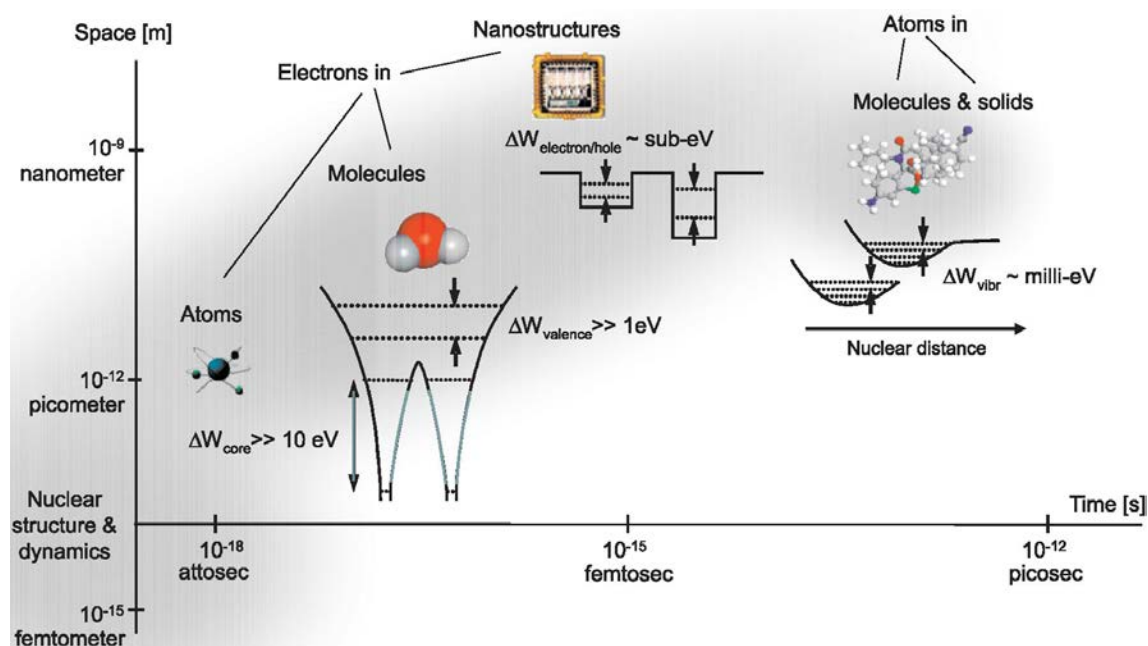


图 1.1 微观粒子运动的空间及时间尺度^[1]

1.1 从飞秒走向阿秒

目前,很多实验室已经能将红外飞秒激光脉冲压缩至接近一个光学周期(2.8~4 fs) [8, 11-15]。若要进一步将脉冲宽度压缩至小于一个飞秒,则必须将其光谱半高宽(FWHM)增加到2 eV以上。最近一个德国的研究小组成功地做到了这一点,他们将飞秒红外激光的光谱展宽至250~1000 nm,并最终压缩至415 as [16]。但这种传统光学脉冲压缩的方法很难将激光脉冲的时间长度进一步缩短。

从光学角度上来说,产生超短激光脉冲等价于产生色散得到很好补偿的超宽带的相干辐射。对于一个中心波长为 λ_0 的理想高斯型激光脉冲,其光谱宽度 $\Delta\nu$ 和脉冲长度 τ 满足: $\tau\Delta\nu \geq 0.441$ [17],则该脉冲所要求的最窄光谱宽度可表示为:

$$\Delta\lambda_{min} = 2 \left(\sqrt{\left(\frac{c\tau}{0.441} \right)^2 + \lambda_0^2} - \frac{c\tau}{0.441} \right) \quad (1.1)$$

设想我们把德国研究小组的光学脉冲长度进一步压缩到200 as,其中心波长约为600 nm,代入式(1.1)可以得到需要得最小光谱宽度为 $\Delta\lambda = 960$ nm。这样的光谱得从紫外区的120 nm开始,覆盖所有可见光波段,一直延伸到红外波段的1080 nm,要产生如此宽带的相干辐射并很好的对其进行色散补偿非常具有挑战性。因此,我们很难将传统飞秒激光器的脉冲宽度进一步缩短,必须寻求新的短脉冲产生机制。如果同样长度的脉冲处在极紫外区,比如 $\lambda_0 = 30$ nm,则所要求的最小光谱宽度为 $\Delta\lambda = 6.5$ nm,比中心波长要小很多,相比之下更容易制备。其实从时域上看,600 nm光波的光学振动周期是2 fs,200 as的长度只相当于1/10个波长,而对30 nm的光波,200 as的时间内有2个振动周期,是相对比较容易合成的。因此在极紫外甚至波长更短的软X射线波段产生阿秒脉冲是更为可行的方案。

目前为止,人们提出了多种在极紫外及软X射线波段产生阿秒脉冲的方法,包括受激拉曼散射(Stimulated Raman Scattering) [18-20],自由电子激光(Free Electron Laser) [21-23],等离子体镜(Plasma Mirror) [24, 25]及高次谐波(High-order Harmonics Generation)等。虽然受激拉曼散射具有产生阿秒脉冲的理论依据,但由于缺乏合适的介质,其所产生的谱宽受到限制,目前主要用来产生处于紫外区的长度为几个飞秒的激光脉冲。自由电子激光利用电子作为增益介质对电磁辐射进行放大,产生的光谱宽度足以支持100 as的超短激光脉冲[22]。但这种方法技术复杂,设备庞大,只有极少数实验室能够搭建。等离子体镜利用等离子体的相对论非线性来产生极紫外辐射,理论上有着更高的转化效率,但尚未有这种技术的相关实验报道。高次谐波从发现之初便受到人们的极大关注。这种技术不仅在理论上有着清晰的物理图象,在实验上也能通过简单的装置实现,因此得到人们的广

泛应用。此外，高次谐波本质上是一系列时间上周期排列的阿秒脉冲串^[26]，通过适当的选通（Gating）技术^[27-33]，人们能从中获得单个阿秒脉冲。借助高次谐波过程，人们能产生的最短的阿秒脉冲已达 67 as^[34]。目前高次谐波已成为超短阿秒脉冲产生的主要手段，为原子分子超快动力学的实验研究提供了强有力的工具。

1.1.1 高次谐波与阿秒脉冲串

在非线性光学中，当光强足够高时，光在介质中传播会产生新的频率成分。这个过程中，原子可以吸收二个以上的光子，然后把这些能量转化为一个高能光子辐射出来，此即所谓谐波的产生。利用偏硼酸钡（BBO）晶体对基频光进行二倍频是为人熟知的二次谐波产生的现象。非线性光学的微扰理论把介质极化率表述成电场强度的泰勒级数，可以解释许多非线性光学现象，例如差频、和频、拉曼效应及克尔效应等。微扰理论收敛的前提是极化系数随阶数增高而急剧减小。因此，谐波的阶数越高，转化效率越低。传统上认为阶数很高的谐波由于转化效率极低是非常难于观测的。但在 1987 年，Wildenauer 等人首次观测到了碘激光器（1.315 μm ）的 15 次谐波^[35]。到 1988 年，Ferray 等人在实验中测到 1.064 μm 基频光的高次谐波，阶数达到 33 次^[36]。到 1997 年，高达 297 次的谐波被实验观察到^[37]。这些谐波都远远超出微扰理论所预言的范畴，是由一种全新的物理机制引起的，本文将在第二章对之进行详细介绍。

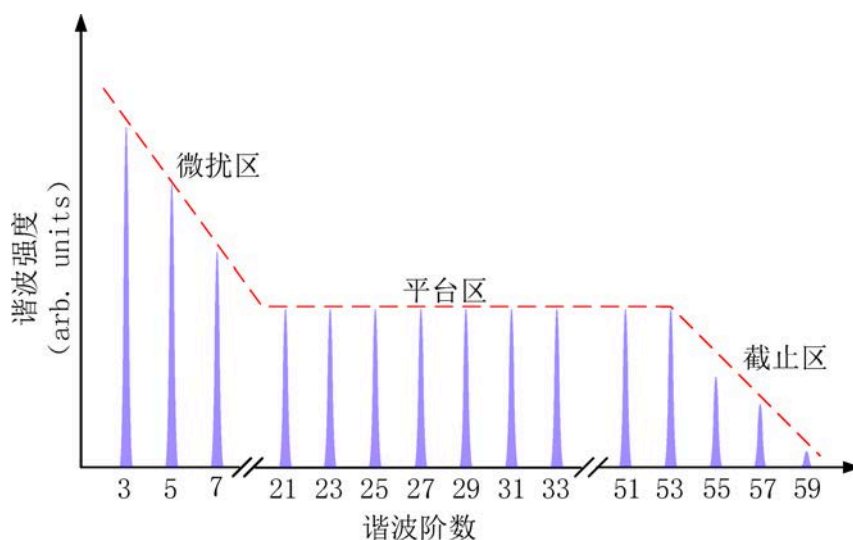


图 1.2 高次谐波示意图

除了其产生机制，高次谐波本身也是一种宽带的相干光源，具有的合成超短阿秒脉冲的潜力也引起人们的极大兴趣。图1.2是一个典型的飞秒激光脉冲与惰性气体产生的高次谐波光谱的示意图。高次谐波光谱具有如下的几个特点：第一，

在光谱结构上，整个光谱是由一系列分立谱组成的。并且分立谱之间的间隔为基频频率 ω_0 的两倍，因此，从基频开始，只有奇数次谐波存在。第二，在光谱强度上，可以把高次谐波分成微扰区，平台区和截止区。在微扰区，光谱强度像非线性微扰理论要求的那样随着阶数增高而迅速减小。在平台区，各次谐波的强度几乎保持不变。这一区域在频谱上可以占据很大的带宽。在截止区，谐波强度逐渐减弱，直到消失。通常把最高阶的谐波称为截止阶。第三，截止阶频率随着入射激光光强的升高而增大。因此，高次谐波为我们提供了一个在极紫外及软 X 射线波段生成超宽带光谱的方法，是潜在的阿秒光源。

高次谐波虽然只是测量到的光谱信号，但从它奇特的光谱结构能推断出它在时域上的特性。假设各阶高次谐波之间是相干的，那么由傅里叶变换原理，这样的分离谱必定对应着时域上的周期信号，即周期排列的脉冲串。此外，高次谐波的频率间隔为 $2\omega_0$ ，则可得出脉冲串之间的时间间隔为 $T_I = \frac{T_0}{2}$ ，其中 T_0 是基频光的周期。这表明在基频光的每半个周期内都包含一个光脉冲信号，那么这个光脉冲的持续时间就要小于激光的半个周期，达到阿秒量级。1999 年，Papadogiannisc 等人通过互相关实验观察到了高次谐波产生过程中阿秒脉冲串存在的证据^[38]。2001 年，Paul 等人用实验证实了各阶谐波之间的相干性，并测量到了由 250 as 子脉冲组成的阿秒脉冲串^[26]。

1.1.2 单个阿秒脉冲的产生

虽然利用高次谐波过程很容易得到阿秒脉冲串，但这些脉冲总长度一般在几飞秒到几十飞秒的量级。要想获得超快的时间分辨，必须想办法从阿秒脉冲串中选出一个孤立的阿秒脉冲。产生单个阿秒的基本办法是在基频光的大部分周期里抑制高次谐波的发射，只在半个周期的时间窗口里允许高次谐波发射。这个发射的时间窗口称为选通门 (Gating)。根据高次谐波产生的规律，人们发明了各种选通门技术来获得单个阿秒脉冲。

因为激光在每半个周期内都会辐射一个阿秒脉冲，所以很直接的一个方法便是减小基频激光的脉冲长度以减少产生的阿秒脉冲的个数。一个中心波长为 800 nm、脉冲长度为 4 fs 的激光脉冲只包含不到两个光学周期。利用它产生的阿秒脉冲串大概含有 3~4 个阿秒子脉冲。此外，激光光强在时间上一般成类高斯分布，每半个周期里电场强度的变化非常明显。通过对激光光场的精确控制，我们可以让光电场在包络中心处的半个周期内振幅最大，而其他周期里，电场振幅迅速减小。这将直接导致每个半周期里产生的阿秒子脉冲的频率成分不一样，其中最大峰值处的电场生成的阿秒子脉冲具有最宽的频谱和最高的截止频率。利用合适的滤波片，就能把最高频率部分选出来，从而得到单个阿秒脉冲。这种由光电

场振幅决定的单个阿秒产生技术称为振幅选通门 (Amplitude Gating)。利用这种技术, 人们获得了 80as 的单个阿秒脉冲^[28]。

中性气体原子是发射高次谐波的关键因素, 但激光在和气体靶作用的过程中, 会由于电离逐渐消耗掉气体中的中性原子。特别是当激光脉冲很短 (小于 5 fs) 又足够强时, 激光的电场会在不到一个周期的时间里将中性气体原子全部电离。那么在这个周期之后的激光脉冲将不会再产生高次谐波, 而只在电离发生的那半个周期里辐射阿秒脉冲发射, 这便是电离选通门 (Ionization Gating)^[30] 的原理。这种方法对激光电场的形状、激光强度等要求十分严格。

利用高次谐波转化效率对基频光的偏振极度敏感的特性, Corkum 等人在 1994 年提出了偏振选通门 (Polarization Gating) 的方案^[32]。由于椭圆偏振的电场会极大抑制高次谐波的发射, 所以单个阿秒的产生可以通过改变基频电场的偏振状态来实现, 这就要求基频光只在不大于半个周期的时间窗口里是线性偏振的, 而其余时间是椭圆偏振的。这样的激光脉冲可以通过两个具有一定时间延迟的反向旋转的圆偏振光来合成。这种偏振状态随时间变化的基频光场在实验上能利用共线的两块双折射波片很容易制备^[39], 因此有很强的实用性。此外, 相对于振幅选通门和电离选通门技术, 偏振选通门技术允许使用长一点 (~8 fs) 的基频光脉冲来获得单个阿秒脉冲, 但太长的脉冲会因为椭圆偏振的前导电场对气体原子的过度电离而抑制单个阿秒脉冲的产生。

上述的三种方法都是设法让把阿秒脉冲的发射窗口限制在激光半周期的极小时间窗口内, 存在着很大的难度。为了能适当放宽单个阿秒脉冲的产生条件, 一个可行的办法是增大阿秒脉冲串之间的时间间隔。主要原理是利用基频光的倍频光对基频光进行微弱的调制, 使每个周期里的正负电场此消彼长, 不再对称。这样的激光周期里, 只有振幅较大的那部分电场有足够的光强产生高次谐波, 而电场振幅被倍频光削弱的半个周期里不会有谐波产生, 因此, 阿秒脉冲串的间隔也由半个周期变成一个周期。这种方法被称为双色场选通门 (Two-color Gating)^[40-42]。利用这种思想, 人们后来发展出了多色场选通门技术。

大部分的单个阿秒脉冲产生方案都在技术上要求对基频激光脉冲进行精细到电场的定制。不仅要求脉冲长度短到只有几个周期 (<10 fs), 还要求载波包络相位 (CEP) 稳定。虽然目前飞秒激光技术已十分成熟, 但要获得载波包络相位稳定的周期级飞秒激光脉冲却并不容易。因此, 单个阿秒脉冲的产生仍受到极大的限制。其实在偏振选通门技术中, 脉冲长度主要是受到前导脉冲电离的限制。若在其中同时加入双色场, 便能增大选通门的宽度, 这就意味着可以把基频激光脉冲中更多的部分可以放在线性偏振区域, 前导部分的长度因此得以缩短, 进而可以用更长的激光脉冲来产生单个阿秒脉冲。这种把偏振选通门和双色场选通门

结合在一起的方法称为双光学选通门技术 (Double Optical Gating) [43-45]。这种技术允许人们使用长达 15 fs 的激光来产生单个阿秒脉冲。而广义双光学选通门 (Generalized Double Optical Gating) [46] 甚至可以用 28 fs 的载波包络相位不锁定的激光脉冲来直接产生单个阿秒脉冲。这样的激光脉冲是目前大部分商业飞秒激光器的典型输出光束。因此, 这种技术极大放宽了单个阿秒脉冲的产生条件, 使大部分的实验室具备了生成单个阿秒脉冲的能力。

1.1.3 单个阿秒脉冲的测量

目前, 电子仪器的时间分辨本领只能达皮秒 (10^{-12} s) 量级。即使面对飞秒激光脉冲, 它们也无法直接测量。飞秒激光脉冲的测量主要是通过非线性效应利用飞秒激光脉冲自身作为参考来测量自己, 同样的方法也可以用来测量阿秒脉冲。Tzalla 等人[47] 借助氦原子的双光子电离过程进行了阿秒的自相关测量实验, 测得了由 780 as 的子脉冲组成的阿秒脉冲串。近来, 甚至有对阿秒脉冲直接进行 FROG (Frequency Resolved Optical Gating) 测量的报道[48]。但这种利用非线性效应的直接测量方法却很难成为普适的单个阿秒脉冲测量手段, 原因主要有两个: 第一, 单个阿秒脉冲处于极紫外波段, 并有着极大的带宽, 缺乏相应的非线性介质; 第二, 阿秒脉冲的强度很弱, 一般在纳焦 (10^{-9}) 量级, 很难产生非线性效应。但是阿秒脉冲有一个天然的优势——单光子能量高, 能轻易地通过单光子作用将原子电离, 阿秒脉冲的长度信息也能由此过程反映到光电子能谱上。从这个思想出发, 并利用阿秒脉冲与另一束飞秒激光的相对延时作为时间参考, 人们提出了各种测量阿秒脉冲的方法[26, 47, 49-55]。

最先在实验中被成功使用的是 Paul 等人[26, 49] 提出的基于双光子跃迁干涉的阿秒脉冲串重建技术, 简称为 RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions)。在这种方法中, 他们以一定的相对延迟把阿秒脉冲和红外飞秒激光同时打到气体原子上。由于红外激光的存在, 产生的电子会吸收或放出一个红外光子, 因而在光电子谱上, 每阶谐波的两边会出现相差一个红外光子能量的边频。而相邻的谐波能量差为两个光子, 所以它们中间的边频会同时有来自这两个谐波的贡献, 这样边频信号中会出现与相邻谐波相位差有关的干涉信号。通过对干涉信号的解调, 人们最终能获取各阶谐波的相对相位, 进而重建阿秒脉冲串。但这种方法大部分情况下只能对阿秒脉冲串进行测量, 而且还得假设阿秒脉冲串中的每个小脉冲具有相同的结构; 另外, 它也不能决定阿秒脉冲串中子脉冲的具体数量, 具有很大的局限性。

条纹相机 (Streak Camera) 技术早在阿秒脉冲出现之前便被用来测量极紫外脉冲的长度。条纹相机用随时间变化的横向偏转电场把不同时刻产生的光电子在

空间上分开，从而通过测量光电子在空间上的分布来获取被测极紫外脉冲在时间上的光强分布。横向偏转电场随时间的变化速度和初始电子横向动量都极大影响最终的分辨率。一般而言，它的分辨率仅为亚皮秒量级，无法用来测量阿秒脉冲。2002年，Itatani等人^[53]在此基础上提出了阿秒条纹相机的方法。他们把条纹相机中的横向偏转电场换成变化速度更快的飞秒激光场，并且测量出射的光电子动量分布，最终根据激光电场对光电子能谱的改变得出阿秒脉冲的长度信息，其时间分辨率可达70–100 as。

2005年，Mairesse等人^[56]注意到阿秒条纹相机技术中，飞秒激光脉冲对阿秒光电子的作用可以理解为一种“光学门”，并且所测物理量是被“光学门”作用之后的电子动量分布，这与测量飞秒脉冲的FROG重建技术非常相似，于是提出了一种后来被广泛采用的单个阿秒脉冲测量技术——基于频率分辨的光学门的阿秒脉冲完全重建技术，或缩写为FROG-CRAB (Frequency Resolved Optical Gating for Completely Reconstruction Attosecond Bursts)。在阿秒条纹相机中，红外激光脉冲的作用是在光电子波包上引入一个相位调制。调节红外飞秒脉冲与阿秒脉冲的延时就能把这种相位调制加到光电子波包的不同时间位置。然后对其光谱进行测量，最终会得到一个和飞秒光学FROG测量过程中类似的二维谱图。利用相同的反演算法，就可以同时完全重建阿秒脉冲和红外飞秒激光。这种技术在飞秒激光测量中十分成熟，理论上可以完全重建任意波形的阿秒脉冲，具有很好的可靠性和易用性。

利用FROG-CRAB，人们成功测得了130 as^[31]和80 as^[28]的单个阿秒脉冲。但要测量更短的阿秒脉冲，FROG-CRAB却有着天生的不足。首先，由于要用到FROG技术中的相位重建算法，FROG-CRAB必须建立在“中心动量假设”的基础之上，但这种假设对于极短的超宽带阿秒脉冲是不正立的。其次，为了能对电子能谱产生较大的调制，FROG-CRAB需要较强的飞秒激光来提供偏转电场。但强激光本身也会由多光子电离而产生杂散光电子，从而极大降低阿秒光电子信号的信噪比。Chini等人^[57]在2010年提出对FROG-CRAB的谱图进行单频滤波，从谱图的单频成分完全重建阿秒脉冲，从而绕开了“中心动量”假设。这种方法要求很低的飞秒偏转激光场，从理论上可测量任意长度度的单个阿秒脉冲。这种方法被称为PROOF (Phase Retrieval by Omega Oscillation Filtering)。

1.2 阿秒分辨的电子超快动力学实验技术

从上面的介绍中，我们可总结出阿秒脉冲的两大特性：第一，光谱覆盖范围广，且单光子能量高；第二，时度长度短。目前实验上常利用飞秒激光与原子作用的高次谐波机理来产生阿秒脉冲，这种方法产生的光子能量可以从

10 eV 一直延伸到高达 1600 eV^[58]。阿秒脉冲的光谱可以涵盖整个“水窗”波段 (284 eV~543 eV)，这一波段的光子能量处于碳和氧的 K 系吸收边界之间，会被含碳的物质强烈吸收却对于含氧的水相对透明。因而这一波段的阿秒脉冲可以被用来进行生物活体成像。另外，这样的光谱范围包含了绝大部分的电子跃迁、电离及解离等动力学过程发生所需要的光子能量，因而阿秒脉冲能有效地通过单光子过程与原子分子体系进行作用，再加上阿秒脉冲的超短特性，这就为电子超快动力学的实时探测和操控提供了可能。要真正做到这些，就要用到阿秒泵浦—阿秒探测技术。在这种实验中，一个阿秒脉冲（泵浦光）被首先用来触发电子动力学过程，然后在这个过程开始后的某个特定时间用另一束阿秒脉冲（探测光）来探测该系统的瞬时状态。如果这个动力学过程是可重复的，那么我们就能够改变探测光和泵浦光的延时，从而描绘出完整的动力学演化过程。这就是阿秒泵浦—阿秒探测的基本原理。由于阿秒脉冲长度小于电子动力学过程的时间尺度，这种探测能使人们看清复杂动力学过程中电子运动的中间过程，这将极大地改善人们对于微观超快过程的认知和操控能力。然而，由于受到阿秒光源强度的限制，真正的阿秒泵浦—阿秒探测技术还并没有在实验中被实现。目前利用阿秒脉冲进行高时间分辨的实验大都要用一束红外飞秒激光去代替泵浦或者探测光。下面介绍两种利用阿秒脉冲进行电子超快动力学探测的常用实验技术。

1.2.1 阿秒光电子谱技术

阿秒光电子谱技术是在阿秒条纹相机技术的基础上发展而来，它们最终都是测量光电子能谱或动量谱分布。它的过程有两步：首先，原子或分子体系中的电子受一束阿秒脉冲的作用而跃迁到自由态或者高激发态；其次，具有特定延迟的飞秒脉冲对自由电子进行加速或者电离高激发态的电子，然后测量电子的能量或动量。通过改变第二步的延迟，这种方法实际上测量到的是阿秒脉冲产生的电子波包与飞秒激光场的互相关信号。虽然飞秒激光的脉冲长度远远大于阿秒量级，但由于这种互相关作用是与激光的电场而不是光强直接相关的，所以仍然可以达到阿秒量级时间分辨。

这种技术的一个成功应用是由 Krausz 小组完成的氩原子俄歇电子发射实验^[59]。他们用 250 as 的极紫外脉冲把氩原子 M 壳层的一个电子剥离而形成空穴，这种空穴很不稳定，最外层电子很快就会占据这个空穴并释放出一个俄歇电子。一束红外飞秒激光场同时被加入进来对这个俄歇电子进行加速，最终的电子动量与激光场和阿秒脉冲的相对延迟相关，所以根据电子动量谱便能把不同时刻的俄歇电子分开，从而得到俄歇电子产量随时间的变化关系。实验结果显示氩原子的 M 壳层空穴的寿命为 7.9 fs。随后他们用同样的技术^[60]观测到了氖离子 (Ne^+) 的

电离速率在亚周期的改变。Steve 等人^[61]在 2010 年展示了这种技术可以被用来探测和控制氦原子电离与自电离的相互干涉过程。2012 年, Neppi 等人^[62]对镁的内壳层电子和价电子的光电离过程进行了阿秒尺度的分辨。

阿秒光电子谱技术在超快时间分辨实验中得到了很多成功的应用。但它却有一些固有的缺点和限制。首先, 要求附加的飞秒激光场具有较强的光强, 可能对被测系统本身造成改变; 其次, 这种技术探测的是电子或者离子。这些粒子产生的效率很低, 所以通常要对信号进行很长时间的积分, 因而测量速度很慢。同时, 探测系统中的难于避免的杂散带电粒子也会降低信噪比。此外, 对电子的测量总会由于空间电荷效应而存在误差; 最后强飞秒激光场与气体靶作用也会产生光电子, 从而影响最终测量信号。

1.2.2 阿秒瞬态吸收光谱技术

阿秒瞬态吸收光谱技术测量原子或分子体系在不同延时的飞秒脉冲作用下对阿秒脉冲的瞬态吸收光谱的改变。这种方法中, 阿秒脉冲首先把原子或分子的基态电子激发到各个束缚态和电离态, 然后飞秒脉冲会引起各个束缚态之间或者束缚态与电离态之间的耦合, 进而改变最终的吸收谱结构。而这种改变与飞秒脉冲作用于激发态原子的时刻密切相关, 所以根据不同延时下的吸收谱能够得到原子或分子结构及其内部电子状态随时间的演化。阿秒瞬态吸收光谱技术的第一次应用是在 2010 年, Goulielmaskis 等人^[63]利用这种技术观测到了氦原子的价电子在亚飞秒尺度上的运动。同年, Wang 等人^[64]用同样的实验技术对氦原子的自电离态进行时间分辨。Chini 等人^[65]利用阿秒瞬态吸收光谱技术测量到了氦原子 $1s3p$ 束缚态的交流斯塔克位移具有亚周期的超快振荡。随后氦原子的阿秒瞬态吸收光谱研究被多个小组相继报道^[66-68], 更多的亚周期超快动力学被揭示出来。Wang 等人^[69]在 2013 年进行了氦原子的阿秒瞬态吸收光谱研究, 证实了这种技术在复杂原子体系中的有效性。

相比于阿秒光电子谱技术, 阿秒瞬态吸收光谱技术具有几大优势: 第一, 数据采集快。由于测量的是光子信号, 其信号强度远远高于电子或者粒子信号, 能极大地缩短数据采集时间; 第二, 信噪比高, 对光子信号测量的信噪比要好于对电子或粒子的测量; 第三, 可靠性高。飞秒激光场的作用只是引起激发态之间的耦合, 并不需要很高的光强, 所以不会对被测系统造成额外的改变; 第四, 适用范围更广。这种技术可以同时束缚态和连续态的动力学过程进行测量。

1.3 阿秒科学技术在国内的研究现状

阿秒科技作为一个年轻的研究领域, 具有重大科学和应用价值, 正吸引着众多国家的科研学者投入其中。我国的研究人员也对其十分关注^[70-74], 并在阿秒脉

冲的产生探测^[75-92] 及应用^[93, 94] 方面做了许多研究工作。其中华中科技大学陆培祥教授领导的研究小组提出了许多新颖的单个阿秒脉冲产生方案^[95-106]; 中国科学院上海光学精密机械研究所徐至展院士的研究小组在高次谐波及阿秒脉冲的产生及优化方面作出了许多卓有成效的理论及实验研究^[107-116]; 北京大学龚旗煌教授的研究小组致力于应用阿秒脉冲进行电子超快动力学测量的理论研究^[117-120]; 吉林大学原子与分子物理研究所在单个阿秒的产生及优化方面也做了许多研究工作^[121-126]; 北京中科院物理所魏志义研究员的小组最近产生并测得了 160 as 的极紫外脉冲^[127]。

2013 年 6 月国际阿秒科学暨第三届马普阿秒科学研讨会在北京召开, 来自世界各地的阿秒专家就阿秒激光光源、高次谐波产生、载波包络相位控制、超快动力学、强场物理、理论模拟及超快非线性现象及其应用等八个议题进行了深入的交流, 不仅报告了最新的前沿成果, 而且深入讨论了未来阿秒激光科学的发展趋势, 极大促进了国内超快科学研究者与国际顶尖专家的交流, 为进一步的国际合作研究及促进阿秒科技在国内的发展奠定了坚实的基础。

单个阿秒脉冲及其应用技术的出现在超快光谱学方面掀起了新的篇章, 科学家也将从研究原子分子动力学过程的飞秒化学时代进入研究原子内部电子动力学的阿秒物理时代。随着阿秒脉冲产生技术进一步发展, 我们终会将阿秒泵浦-阿秒探测技术用以实践, 揭示并操控超快电子动力学过程, 从而极大改善人类对微观世界的认知, 为新材料新能源问题作出巨大贡献。

1.4 本文的主要内容

本文的重点是利用阿秒瞬态吸收光谱技术研究原子分子内部电子的超快动力学过程。本文的内容安排如下:

第二章详细介绍了超短飞秒脉冲的产生及利用飞秒激光脉冲与原子相互作用产生高次谐波的机理, 并讨论了利用准相位匹配方法提高次谐波产量的机理。

第三章介绍了各种从阿秒脉冲串中获得单个阿秒脉冲的选通技术, 并重点讨论了双光学选通门技术, 它是我们在实验中产生单个阿秒脉冲的主要方法。本章也详细介绍了阿秒脉冲的 FROG-CRAB 及 PROOF 测量技术。此外, 我们通过相位匹配裁剪光谱及利用金属膜进行色散补偿, 成功将阿秒脉冲压缩至 67 as。

第四章详细介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的基本理论和实验装置。并提出了一种高分辨率极紫外谱仪的设计方案, 以及一种新颖的谱仪原位标定方法。

第五章介绍了氦原子阿秒瞬态吸收光谱的实验结果。我们在实验中观察了亚周期交流斯塔克效应、Autler-Townes 分裂、量子路径干涉、激光诱导态以及电离阈的亚周期变化等超快动力学过程, 并借助理论模型对之进行了详细的讨论。

第六章介绍了氦原子及氢分子的阿秒瞬态吸收光谱实验。实验表明，对于较为复杂的氦原子，基于单电子近似的理论模型仍然能够解释主要的实验现象。在氢分子实验中，我们同时观察了电子及原子核的动力学过程，但更精确的理论解释仍需要我们继续探讨。

第七章对本文的研究结果和创新点进行了总结，并对本文研究的后续工作做了展望。

参考文献

- [1] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. *Reviews of Modern Physics*. 2009, 81 (1): 163.
- [2] Spence D, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti: sapphire laser [J]. *Optics Letters*. 1991, 16 (1): 42–44.
- [3] Fork R, Greene B, Shank C. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking [J]. *Applied Physics Letters*. 1981, 38: 671–672.
- [4] Rizvi N, French P, Taylor J. 50-fs pulse generation from a self-starting cw passively mode-locked Cr: LiSrAlF₆ laser [J]. *Optics letters*. 1992, 17 (12): 877–879.
- [5] Seas A, Petričević V, Alfano R. Generation of sub-100-fs pulses from a cw mode-locked chromium-doped forsterite laser [J]. *Optics letters*. 1992, 17 (13): 937–939.
- [6] Yanovsky V, Pang Y, Wise F, et al. Generation of 25-fs pulses from a self-mode-locked Cr: forsterite laser with optimized group-delay dispersion [J]. *Optics letters*. 1993, 18 (18): 1541–1543.
- [7] Ell R, Morgner U, KÃÄrtner F, et al. Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti: sapphire laser [J]. *Optics letters*. 2001, 26 (6): 373–375.
- [8] Schenkel B, Biegert J, Keller U, et al. Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum [J]. *Optics letters*. 2003, 28 (20): 1987–1989.
- [9] Zewail A H. Femtochemistry: ultrafast dynamics of the chemical bond [M]. World Scientific, 1994.
- [10] Zewail A. The chemical bond: structure and dynamics [M]. Academic Press, 1992.
- [11] Matsubara E, Yamane K, Sekikawa T, et al. Generation of 2.6 fs optical pulses using induced-phase modulation in a gas-filled hollow fiber [J]. *JOSA B*. 2007, 24 (4): 985–989.

-
-
- [12] Yakovlev V, Dombi P, Tempea G, et al. Phase-stabilized 4-fs pulses at the full oscillator repetition rate for a photoemission experiment [J]. [Applied Physics B](#). 2003, 76 (3): 329–332.
- [13] Steinmeyer G, Stibenz G. Generation of sub-4-fs pulses via compression of a white-light continuum using only chirped mirrors [J]. [Applied Physics B](#). 2006, 82 (2): 175–181.
- [14] Baltuška A, Fuji T, Kobayashi T. Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control [J]. [Optics letters](#). 2002, 27 (5): 306–308.
- [15] Yamane K, Zhang Z, Oka K, et al. Optical pulse compression to 3.4 fs in the mono-cycle region by feedback phase compensation [J]. [Optics letters](#). 2003, 28 (22): 2258–2260.
- [16] Luu T T, Hassan M T, Moulet A, et al. Isolated optical attosecond pulses [C]. In [CLEO: QELS_Fundamental Science](#). 2013.
- [17] Trgäer F. [Springer handbook of lasers and optics](#) [M]. Springer-Verlag New York, 2007.
- [18] Yavuz D, Sokolov A, Harris S. Eigenvectors of a Raman medium [J]. [Physical review letters](#). 2000, 84 (1): 75–78.
- [19] Harris S, Sokolov A. Subfemtosecond pulse generation by molecular modulation [J]. [Physical review letters](#). 1998, 81 (14): 2894–2897.
- [20] Kaplan A. Subfemtosecond pulses in mode-locked 2π solitons of the cascade stimulated Raman scattering [J]. [Physical review letters](#). 1994, 73 (9): 1243–1246.
- [21] Barletta W, Bisognano J, Corlett J, et al. Free electron lasers: Present status and future challenges [J]. [Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment](#). 2010, 618 (1): 69–96.
- [22] Zholents A A, Fawley W M. Proposal for intense attosecond radiation from an x-ray free-electron laser [J]. [Physical review letters](#). 2004, 92 (22): 224801.
- [23] Zholents A, Zolotarev M. Attosecond x-ray pulses produced by ultra short transverse slicing via laser electron beam interaction [J]. [New Journal of Physics](#). 2008, 10 (2): 025005.
- [24] Nees J, Naumova N, Power E, et al. Relativistic generation of isolated attosecond pulses: a different route to extreme intensity [J]. [Journal of Modern Optics](#). 2005, 52 (2-3): 305–319.

-
-
- [25] Naumova N, Nees J, Sokolov I, et al. Relativistic Generation of Isolated Attosecond Pulses in a λ^3 Focal Volume [J]. *Physical review letters*. 2004, 92 (6): 063902.
- [26] Paul P M, Toma E, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. *Science*. 2001, 292 (5522): 1689–1692.
- [27] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers [J]. *Physical review letters*. 2009, 103 (18): 183901.
- [28] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics [J]. *Science*. 2008, 320 (5883): 1614–1617.
- [29] Abel M J, Pfeifer T, Nagel P M, et al. Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission [J]. *Chemical Physics*. 2009, 366 (1): 9–14.
- [30] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields [J]. *Nature Photonics*. 2010, 4 (12): 875–879.
- [31] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. *Science*. 2006, 314 (5798): 443–446.
- [32] Corkum P, Burnett N, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses [J]. *Optics letters*. 1994, 19 (22): 1870–1872.
- [33] Oron D, Silberberg Y, Dudovich N, et al. Efficient polarization gating of high-order harmonic generation by polarization-shaped ultrashort pulses [J]. *Physical Review A*. 2005, 72 (6): 063816.
- [34] Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch [J]. *Optics letters*. 2012, 37 (18): 3891–3893.
- [35] Wildenauer J. Generation of the ninth, eleventh, and fifteenth harmonics of iodine laser radiation [J]. *Journal of applied physics*. 1987, 62 (1): 41–48.
- [36] Ferray M, l’Huillier A, Li X, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 1988, 21 (3): L31.
- [37] Chang Z, Rundquist A, Wang H, et al. Generation of coherent soft X rays at 2.7 nm using high harmonics [J]. *Physical Review Letters*. 1997, 79 (16): 2967–2970.
- [38] Papadogiannis N, Witzel B, Kalpouzos C, et al. Observation of attosecond light localization in higher order harmonic generation [J]. *Physical review letters*. 1999, 83 (21): 4289–4292.

-
-
- [39] Tcherbakoff O, Mével E, Descamps D, et al. Time-gated high-order harmonic generation [J]. *Physical Review A*. 2003, 68 (4): 043804.
- [40] Mauritsson J, Johnsson P, Gustafsson E, et al. Attosecond pulse trains generated using two color laser fields [J]. *Physical review letters*. 2006, 97 (1): 013001.
- [41] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field [J]. *Optics letters*. 2006, 31 (7): 975–977.
- [42] Merdji H, Auguste T, Boutu W, et al. Isolated attosecond pulses using a detuned second-harmonic field [J]. *Optics letters*. 2007, 32 (21): 3134–3136.
- [43] Chang Z. Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (5): 051403.
- [44] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrier-envelope phase stabilized lasers [J]. *Physical review letters*. 2008, 100 (10): 103906.
- [45] Gilbertson S, Mashiko H, Li C, et al. A low-loss, robust setup for double optical gating of high harmonic generation [J]. *Applied Physics Letters*. 2008, 92 (7): 071109–071109.
- [46] Gilbertson S, Khan S D, Wu Y, et al. Isolated attosecond pulse generation without the need to stabilize the carrier-envelope phase of driving lasers [J]. *Physical review letters*. 2010, 105 (9): 093902.
- [47] Tzallas P, Charalambidis D, Papadogiannis N, et al. Direct observation of attosecond light bunching [J]. *Nature*. 2003, 426 (6964): 267–271.
- [48] Kosuge A, Sekikawa T, Zhou X, et al. Frequency-resolved optical gating of isolated attosecond pulses in the extreme ultraviolet [J]. *Physical review letters*. 2006, 97 (26): 263901.
- [49] Muller H G. Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions [J]. *Applied Physics B*. 2002, 74 (1): s17–s21.
- [50] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology [J]. *Nature*. 2001, 414 (6863): 509–513.
- [51] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder [J]. *Nature*. 2004, 427 (6977): 817–821.
- [52] Scrinzi A, Geissler M, Brabec T. Attosecond cross correlation technique [J]. *Physical Review Letters*. 2001, 86 (3): 412–415.

-
-
- [53] Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera [J]. *Physical review letters*. 2002, 88 (17): 173903.
- [54] Kitzler M, Milosevic N, Scrinzi A, et al. Quantum theory of attosecond XUV pulse measurement by laser dressed photoionization [J]. *Physical review letters*. 2002, 88 (17): 173904.
- [55] Quéré F, Itatani J, Yudin G, et al. Attosecond spectral shearing interferometry [J]. *Physical review letters*. 2003, 90 (7): 073902.
- [56] Mairesse Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts [J]. *Physical Review A*. 2005, 71 (1): 011401.
- [57] Chini M, Gilbertson S, Khan S D, et al. Characterizing ultrabroadband attosecond lasers [J]. *Opt. Express*. 2010, 18 (12): 13006–13016.
- [58] Popmintchev T, Chen M-C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers [J]. *Science*. 2012, 336 (6086): 1287–1291.
- [59] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy [J]. *Nature*. 2002, 419 (6909): 803–807.
- [60] Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, et al. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms [J]. *Nature*. 2007, 446 (7136): 627–632.
- [61] Gilbertson S, Chini M, Feng X, et al. Monitoring and controlling the electron dynamics in helium with isolated attosecond pulses [J]. *Physical review letters*. 2010, 105 (26): 263003.
- [62] Neppel S, Ernstorfer R, Bothschafter E, et al. Attosecond time-resolved photoemission from core and valence states of magnesium [J]. *Physical Review Letters*. 2012, 109 (8): 087401.
- [63] Goulielmakis E, Loh Z-H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. *Nature*. 2010, 466 (7307): 739–743.
- [64] Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon [J]. *Physical review letters*. 2010, 105 (14): 143002.
- [65] Chini M, Zhao B, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses [J]. *Physical Review Letters*. 2012, 109 (7): 073601.
- [66] Chini M, Wang X, Cheng Y, et al. Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light [J]. *Scientific reports*. 2013, 3: 1105.

-
-
- [67] Chen S, Bell M J, Beck A R, et al. Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (6): 063408.
- [68] Chen S, Wu M, Gaarde M B, et al. Quantum interference in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms [J]. *Physical Review A*. 2013, 87 (3): 033408.
- [69] Wang X, Chini M, Cheng Y, et al. Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon [J]. *Physical Review A*. 2013, 87 (6): 063413.
- [70] 李儒新. 原子级时间与空间尺度的电子加速、轨道操控与阿秒脉冲产生 [J]. *光学与光电技术*. 2011, 09 (05): 1–3.
- [71] 霍义萍, 曾志男, 李儒新. 阿秒脉冲测量的研究进展 [J]. *物理*. 2004, 33 (12): 907—912.
- [72] 韩海年, 魏志义, 苍宇, et al. 阿秒激光脉冲的新进展 [J]. *物理*. 2003, 32 (11): 762—765.
- [73] 陈德应, 王玉铨, 夏元钦. 高次谐波产生阿秒极紫外和 X 光脉冲研究新进展 [J]. *强激光与粒子束*. 2008, 20 (09): 1409—1412.
- [74] 王超, 田进寿, 康轶凡, et al. 时间分辨条纹相机技术的发展及相关研究展望 [J]. *真空科学与技术学报*. 2012, 32 (07): 653–660.
- [75] 陈高, 杨玉军, 郭福明. 双色激光脉冲辐照下 38as 孤立短脉冲的产生 [J]. *物理学报*. 2013, 62 (07): 190–195.
- [76] 陈基根, 曾思良, 杨玉军, et al. 三色激光控制量子路径生成短于 30 阿秒的孤立脉冲 [J]. *物理学报*. 2012, 61 (12): 182–187.
- [77] 韩静, 吉安平, 苗向阳. 通过双色激光场和低频电场合成获得孤立 40 阿秒脉冲 [J]. *原子与分子物理学报*. 2012, 69 (04): 650–654.
- [78] 洪伟毅, 杨振宇, 兰鹏飞, et al. 利用低频场控制轨道直接产生低于 50 阿秒的单个脉冲 [J]. *物理学报*. 2008, 57 (09): 5853–5858.
- [79] 黄峰, 李鹏程, 周效信. 利用两色组合激光场驱动氦原子产生单个阿秒脉冲 [J]. *物理学报*. 2012, 61 (23): 187–192.
- [80] 李钱光, 兰鹏飞, 洪伟毅, et al. 阿秒电离门调控宽带超连续谱的传播特性 [J]. *物理学报*. 2009, 58 (08): 5679–5684.
- [81] 李伟, 王国利, 周效信. 啁啾激光与半周期脉冲形成的组合场驱动原子产生单个阿秒脉冲 [J]. *物理学报*. 2011, 60 (12): 151–156.

- [82] 刘胜男, 陈高, 孟健. 60 fs 长脉宽双色场作用下孤立阿秒脉冲的产生 [J]. 物理学报. 2012, 14 (14): 144–150.
- [83] 罗牧华, 张秋菊, 闫春燕. 超相对论激光和稠密等离子体作用产生阿秒脉冲的优化 [J]. 物理学报. 2010, 59 (12): 8559–8565.
- [84] 孟健, 陈高, 刘胜男. 多周期双色场方案下附加脉冲频率对阿秒脉冲产生的影响 [J]. 物理学报. 2012, 61 (20): 220–228.
- [85] 潘慧玲, 李鹏程, 周效信. 利用两束同色激光场和半周期脉冲驱动原子产生单个阿秒脉冲 [J]. 物理学报. 2011, 60 (04): 172–177.
- [86] 王超, 康轶凡, 田进寿, et al. 两类单阿秒脉冲产生技术的相位依赖性分析 [J]. 激光技术. 2012, 36 (04): 516–519.
- [87] 王超, 刘虎林, 田进寿, et al. 极紫外阿秒脉冲产生过程的本征原子相位分析 [J]. 激光技术. 2012, 36 (03): 342–3435.
- [88] 夏昌龙, 葛鑫磊, 王元生, et al. 利用偏振门方案和静电场组合控制阿秒脉冲的产生 [J]. 原子与分子物理学报. 2012, 29 (02): 312–316.
- [89] 夏昌龙, 刘学深. 任意夹角的双色偏振激光作用下孤立阿秒脉冲的产生 [J]. 物理学报. 2012, 61 (04): 162–166.
- [90] 叶小亮, 周效信, 赵松峰, et al. 原子在两色组合激光场中产生的单个阿秒脉冲 [J]. 物理学报. 2009, 58 (03): 1579–1585.
- [91] 张庆斌, 洪伟毅, 兰鹏飞, et al. 利用调制的偏振态门控制阿秒脉冲的产生 [J]. 物理学报. 2008, 57 (12): 7848–7854.
- [92] 闫春燕, 张秋菊, 罗牧华. 激光与相对论电子束相互作用中阿秒 X 射线脉冲的产生 [J]. 物理学报. 2011, 60 (03): 397–403.
- [93] 彭良友, 徐明辉, 张政, et al. 利用阿秒激光追踪和控制原子分子内部电子的运动 (英文) [J]. 物理学进展. 2010, 30 (04): 354–370.
- [94] 徐天宇, 何峰. H_2^+ 在阿秒以及双色飞秒激光脉冲中解离时电子位置的相干控制 [J]. 物理学报. 2013, 06 (06): 457–462.
- [95] Cao W, Lu P, Lan P, et al. Control of the launch of attosecond pulses [J]. *Physical Review A*. 2007, 75 (6): 063423.
- [96] Cao W, Lu P, Lan P, et al. Efficient isolated attosecond pulse generation from a multi-cycle two-color laser field [J]. *Opt. Express*. 2007, 15: 530–535.
- [97] Cao W, Lu P, Lan P, et al. Single-attosecond pulse generation with an intense multicycle driving pulse [J]. *Physical Review A*. 2006, 74 (6): 063821.

-
-
- [98] Hong W, Li Y, Lu P, et al. Control of quantum paths in the multicycle regime and efficient broadband attosecond pulse generation [J]. *JOSA B*. 2008, 25 (10): 1684–1689.
- [99] Hong W, Lu P, Cao W, et al. Control of quantum paths of high-order harmonics and attosecond pulse generation in the presence of a static electric field [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2007, 40 (12): 2321.
- [100] Hong W, Lu P, Lan P, et al. Few-cycle attosecond pulses with stabilized-carrier-envelope phase in the presence of a strong terahertz field [J]. *Optics express*. 2009, 17 (7): 5139–5146.
- [101] Lan P, Lu P, Cao W, et al. Attosecond ionization gating for isolated attosecond electron wave packet and broadband attosecond xuv pulses [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (5): 051801.
- [102] Lan P, Lu P, Cao W, et al. Carrier-envelope phase-stabilized attosecond pulses from asymmetric molecules [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (2): 021801.
- [103] Lan P, Lu P, Cao W, et al. Isolated sub-100-as pulse generation via controlling electron dynamics [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (1): 011402.
- [104] Lan P, Lu P, Cao W, et al. Efficient generation of an isolated single-cycle attosecond pulse [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (4): 043808.
- [105] Lan P, Lu P, Cao W, et al. Single attosecond pulse generation from asymmetric molecules with a multicycle laser pulse [J]. *Optics letters*. 2007, 32 (9): 1186–1188.
- [106] Lan P, Lu P, Li Q, et al. Macroscopic effects for quantum control of broadband isolated attosecond pulse generation with a two-color field [J]. *Physical Review A*. 2009, 79 (4): 043413.
- [107] Zheng Y, Zeng Z, Zou P, et al. Dynamic chirp control and pulse compression for attosecond high-order harmonic emission [J]. *Physical review letters*. 2009, 103 (4): 043904.
- [108] Zeng Z, Li R, Yu W, et al. Effect of the carrier-envelope phase of the driving laser field on the high-order harmonic attosecond pulse [J]. *Physical Review A*. 2003, 67 (1): 013815.
- [109] Yu Y, Song X, Fu Y, et al. Theoretical investigation of single attosecond pulse generation in an orthogonally polarized two-color laser field [J]. *Optics express*. 2008, 16 (2): 686–694.
- [110] Zeng Z, Cheng Y, Song X, et al. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field [J]. *Physical review letters*. 2007, 98 (20): 203901.

-
-
- [111] Zou P, Zeng Z, Zheng Y, et al. Coherent control of broadband isolated attosecond pulses in a chirped two-color laser field [J]. *Physical Review A*. 2010, 81 (3): 033428.
- [112] Zheng Y, Zeng Z, Li X, et al. Enhancement and broadening of extreme-ultraviolet supercontinuum in a relative phase controlled two-color laser field [J]. *Optics letters*. 2008, 33 (3): 234–236.
- [113] Huo Y, Zeng Z, Li R, et al. Single attosecond pulse generation using two-color polarized time-gating technique [J]. *Optics Express*. 2005, 13 (24): 9897.
- [114] Zeng Z, Li R, Xie X, et al. High-intensity attosecond high-order harmonic generation driven by a synthesized laser field [J]. *Physical Review A*. 2004, 70 (5): 053809.
- [115] Zeng B, Yu Y, Chu W, et al. Generation of an intense single isolated attosecond pulse by use of two-colour waveform control [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2009, 42 (14): 145604.
- [116] Liu C, Zheng Y, Zeng Z, et al. Isolated attosecond pulse emission in the plateau region of high-order harmonics driven by a 7-fs 800-nm laser field [J]. *Physical Review A*. 2009, 79 (4): 043826.
- [117] Zhang Z, Peng L-Y, Gong Q, et al. Momentum space analysis of multiphoton double ionization of helium by intense attosecond xuv pulses [J]. *Optics Express*. 2010, 18 (9): 8976–8989.
- [118] Peng L-Y, Tan F, Gong Q, et al. Few-cycle attosecond pulse chirp effects on asymmetries in ionized electron momentum distributions [J]. *Physical Review A*. 2009, 80 (1): 013407.
- [119] Xu M-H, Peng L-Y, Zhang Z, et al. Attosecond Streaking in the Low-Energy Region as a Probe of Rescattering [J]. *Physical review letters*. 2011, 107 (18): 183001.
- [120] Peng L-Y, Zhang Z, Jiang W-C, et al. Probe of the electron correlation in sequential double ionization of helium by two-color attosecond pulses [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (6): 063401.
- [121] CHEN J-g, YANG Y-j, ZENG S-l, et al. The single X-ray attosecond pulse generation driven by the combined pulse [J]. *Journal of Atomic and Molecular Physics*. 2007, 2: 033.
- [122] Zhang G-T, Wu J, Xia C-L, et al. Enhanced high-order harmonics and an isolated short attosecond pulse generated by using a two-color laser and an extreme-ultraviolet attosecond pulse [J]. *Physical Review A*. 2009, 80 (5): 055404.

- [123] Chen J, Li C, Chi F, et al. Single X-Ray Attosecond Pulse Generation by Using Combined Pulses Irradiating on a United Two-Atom System [J]. *Chinese Physics Letters*. 2007, 24 (1): 86.
- [124] Wu J, Zhai Z, Liu X-S. Extension of high-order harmonics and generation of an isolated attosecond pulse in the chirped laser field [J]. *Chinese Physics B*. 2010, 19 (9): 093201.
- [125] Xia C-L, Ge X-L, Zhao X, et al. Isolated attosecond pulse generation from a model of Ar⁺ cluster in a synthesized two-color laser pulse [J]. *Physical Review A*. 2012, 85 (2): 025802.
- [126] Guo F-M, Yang Y-J, Jin M-X, et al. A theoretical strategy to generate an isolated 80-attosecond pulse [J]. *Chinese Physics Letters*. 2009, 26 (5): 053201.
- [127] Min-Jie Z, Peng Y, Hao T, et al. Generation and Measurement of Isolated 160-Attosecond XUV Laser Pulses at 82 eV [J]. *Chinese Physics Letters*. 2013, 30 (9): 093201.

第二章 高次谐波

第一章中我们提到高次谐波是目前获得阿秒脉冲的主要手段，本章将围绕高次谐波展开讨论。把一束飞秒激光聚焦到气体靶上，当焦点处的光强足够强 ($\sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$) 时，便能产生高次谐波。虽然早在 1987 年^[1] 人们便在实验观测到了这种现象，但直到 1993 年^[2] 它的内在机理才终于被人揭示。本章主要介绍高次谐波的实验技术及其产生机理，并讨论了通过相位匹配提高高次谐波转化效率的方法。

2.1 飞秒激光脉冲与高次谐波实验

高次谐波的发现与激光技术的发展密不可分，尤其是近二十多年来，激光脉冲长度被压短了近六个量级，使人们能轻松达到产生高次谐波所需要的激光强度。如今大多数商业飞秒激光振荡器能直接输出能量在纳焦 (nJ) 量级长度在 10 fs 以下的激光脉冲。经过啁啾脉冲放大，一般可以得到毫焦 (mJ) 量级 30 fs 以下的激光脉冲，可以直接用来进高次谐波实验。若进一步利用空芯光纤对其进行光谱展宽，然后经过啁啾镜的压缩便能得到周期级飞秒激光脉冲 (4–7 fs)，是产生单个阿秒的理想激光束。但由于飞秒激光具有很大带宽，在应用中，透射、反射甚至在空气中的传播都会对其脉冲形状产生改变，所以我们先介绍飞秒激光脉冲的基本性质。

2.1.1 飞秒激光脉冲的基本性质

一个线性偏振的飞秒脉冲的电场 $E(t)$ 可以表述成一个余弦振荡 (载波) 和一个随时间变化的振幅 (包络) $A(t)$ 的乘积：

$$E(t) = A(t)e^{-i(\omega_0 t + \Phi_0)} \quad (2.1)$$

其中 ω_0 是载波圆频率，或称为中心频率，它决定着飞秒激光所位波段的位置。 Φ_0 是初始相位，也称为载波包络相位 (CEP)。下文将会看到，它实际上决定着电场的形状。电场的包络 $A(t)$ 决定着光强随时间的变化关系，一般用高斯函数来描述：

$$A(t) = A_0 e^{-2 \ln 2 \left(\frac{t-t_0}{\tau}\right)^2} \quad (2.2)$$

这里， t_0 是脉冲中心所在的时刻， τ 是脉冲的半高宽 (FWHM)。图 2.1 (a) 显示的是中心频率为 800 nm，脉宽 $\tau = 5 \text{ fs}$ 及载波包络相位分别为 $-\frac{\pi}{2}$ 、 0 、 $\frac{\pi}{2}$ 的三个飞秒脉冲。图中实线代表脉冲的电场，虚线为包络 $A(t)$ 。我们可以看到对于不同的载波包络相位，激光电场虽然有着相同的包络 (也即光强随时间的分布相同)，

但它们的电场有着明显的区别。对于高次谐波这样的超快强场过程，起关键作用的是电场而不是光强，所以特定的高次谐波过程要求对载波包络相位进行精确控制。载波包络相位控制技术往往要用到飞秒激光脉冲特殊的光谱结构。

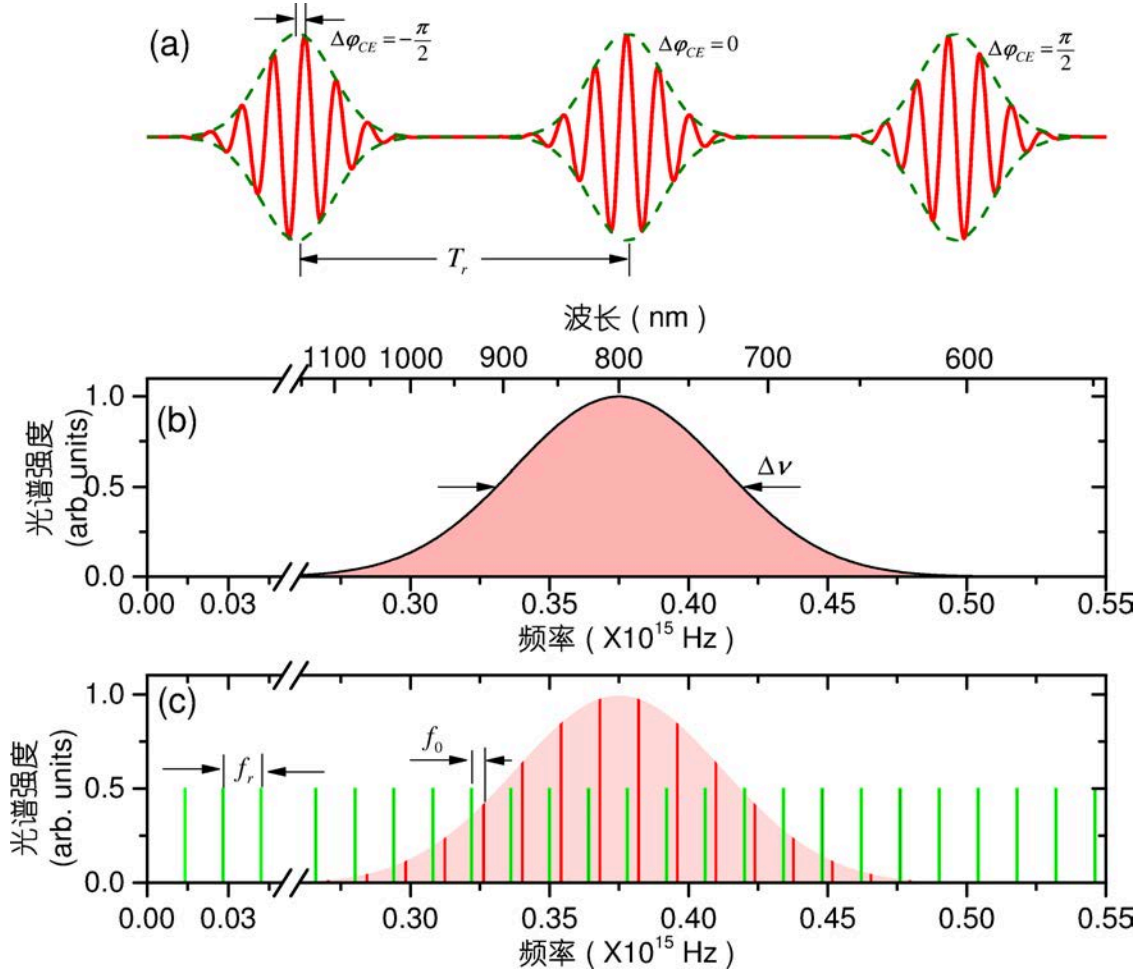


图 2.1 飞秒激光脉冲示意图。(a) 中心频率为 800 nm、脉宽 $\tau = 5$ fs、载波包络相位分别为 $-\pi/2$ 、 0 、 $\pi/2$ 的三个飞秒脉冲；(b) (a) 图中每个脉冲的光谱；(c) 飞秒振荡器的光频梳

对式 (2.1) 进行傅里叶变换，我们可以得到飞秒激光脉冲的光谱强度为：

$$S(\omega) = S_0 e^{-\frac{\tau^2(\omega-\omega_0)^2}{4 \ln 2}} \quad (2.3)$$

它是一个高斯型连续光谱，与载波包络相位无关，其半高宽为 $\Delta\omega = \frac{4 \ln 2}{\tau}$ 。因此脉冲越短，对应于光谱越宽，图 2.1 (b) 是图 (a) 中一个脉冲的光谱，它以 0.375 PHz (10^{15} Hz) 为中心，以 $\Delta\nu \approx 0.09$ PHz 为半高宽呈高斯型分布。整个光谱的波长长

概在 650–1100 nm 之间，半高宽约为 180 nm。面对如此宽的光谱，介质的色散控制就尤为重要。经过介质色散后的脉冲长度可以近似表述为^[3]：

$$\tau' = \sqrt{\tau^2 + \left(4 \ln 2 \frac{\phi''}{\tau}\right)^2} \quad (2.4)$$

这里只考虑了二阶色散的影响。式中 $\phi'' = \left. \frac{d\phi}{d\omega} \right|_{\omega_0}$ ，称群延迟色散（GDD），是由介质自身的性质决定的，例如透镜的常用材料熔石英片在 800 nm 附近的群延迟色散大约是每毫米 40 fs²，而常温常压下的空气约为每米 20 fs²。5 fs 的脉冲经过 1 毫米的熔石英片或者在空气中自由传播两米之后脉冲宽度都会变为 22.7 fs，这种变化会对高次谐波过程产生显著影响，所以在实验中需要对超短飞秒激光脉冲进行精确的色散补偿。

注意到式 (2.4) 只是一个孤立的飞秒脉冲的光谱，而飞秒激光器输出的是以一定频率不断重复的飞秒脉冲串：

$$E_T(t) = \sum_{-\infty}^{+\infty} A(t - nT_r) e^{-i[\omega_0(t-nT_r) + \phi_n]} \quad (2.5)$$

式中 T_r 为脉冲之间的时间间隔， ϕ_n 是每个脉冲的 CEP。因为激光腔里的色散介质一定，所以激光在腔里的每次振荡造成的 CEP 改变是相同的。因而每两个相邻脉冲之间的 CEP 差值是不变的，不妨记为 $\Delta\Phi_{CE}$ ，则对式 (2.5) 作傅里叶变换可得其光谱为：

$$\widetilde{E}_T(\omega) = \widetilde{E}(\omega) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(\Delta\Phi_{CE} - \omega T_r + 2n\pi) \quad (2.6)$$

上式表明飞秒脉冲串的光谱是以孤立飞秒脉冲的光谱为包络的一系列分离谱，只有频率为 $\omega = \frac{\Delta\Phi_{CE}}{T_r} + \frac{2n\pi}{T_r}$ 的成分存在。定义重复频率 $f_r = \frac{1}{T_r}$ ，偏移频率 $f_0 = \frac{\Delta\Phi_{CE}}{2\pi} f_r$ 。则振荡器输出的频谱分量为：

$$f_n = n f_r + f_0 \quad (2.7)$$

它是以重复频率 f_r 为间隔的频率梳，且各个频率分量的谱强度与孤立飞秒脉冲光谱中相应频率分量的谱强度相同，如图 2.1(c) 所示。特别地，当 $\Delta\Phi_{CE} = 0$ 时，每个频率分量将是重复频率的整数倍，如图 2.1(c) 浅色频率梳所示。而通常情况下 $\Delta\Phi_{CE} \neq 0$ ， f_0 便是真实频率梳与浅色频率梳的偏移量。实验中可通过 f-2f 拍频法^[4] 测量并控制 f_0 ，从而稳定激光脉冲的 CEP。一般飞秒激光器振荡级的重复频率约为 80 MHz，可见光频率一般接近 1 PHz，二者相差 8 个数量级，因此，飞秒激光频率梳相对于可见光就像一把刻度非常精细的频率尺，可以用来对光学频率进行精细测量^[5, 6]。

2.1.2 飞秒激光器

虽然飞秒振荡器能直接输出 CEP 稳定的 10 飞秒以下的激光脉冲，但其能量太低，不足以进行高次谐波实验，必须对之进行能量放大。为了避免放大的脉冲对增益介质或其他光学器件产生损害，必须降低放大过程中的激光强度。在能量增加的情况下，我们可以通过增加脉冲长度来降低光强。所以飞秒激光器进行脉冲放大的步骤一般是先用展宽器把从振荡器出来的激光展宽到几百皮秒的长度，然后再送入放大器进行能量增益，最后再通过压缩器把脉冲压缩到飞秒量级。这种技术称为啁啾脉冲放大技术^[7]，是目前在高能量飞秒激光器中广泛采用的手段。图2.2是 Femtolaser 公司生产的 FEMTOPOWER COMPACT PRO 飞秒激光器的光路图。

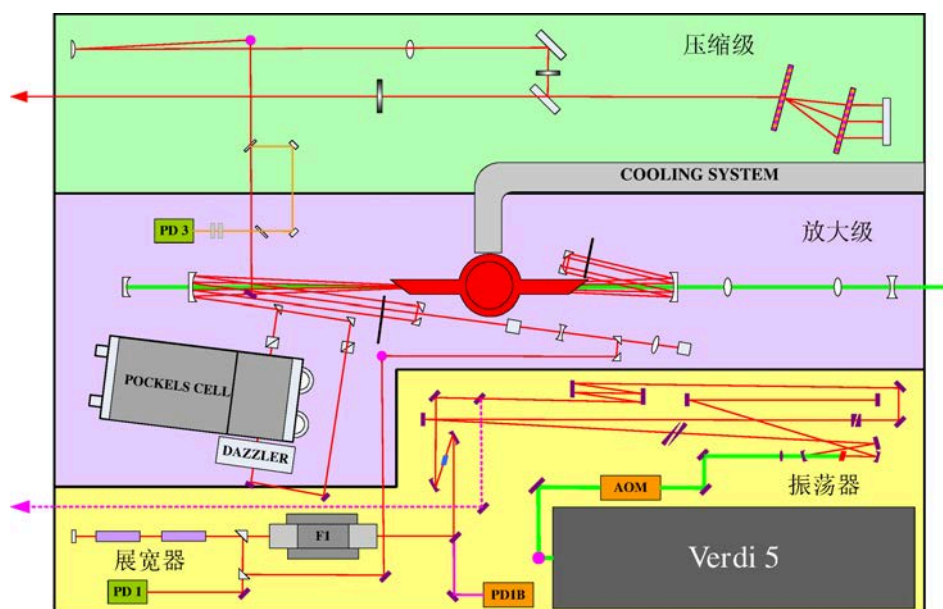


图 2.2 FEMTOPOWER COMPACT PRO 光路图

该飞秒激光器的振荡器集成在系统的下方，能为放大级提供能量在 2nJ 以上 CEP 稳定的种子光，其重复频率为 78 MHz，脉冲长度在 12 fs 以下。在进入放大级之前，种子光先被送入一组由棱镜块组成的展宽器以拉伸脉冲。激光器放大级的增益介质是一个用重复频率为 1 KHz 能量为 20 mJ 绿光泵浦的钛宝石晶体。整个放大过程中，种子光要先后 10 次通过钛宝石晶体，前四通之后，大部脉冲被 Pockels 盒滤掉，重复频率变成 1 KHz。经过 10 次放大，脉冲的能量可达 2 mJ 以上。最后脉冲被一对透射光栅压缩至 30 fs，能量在 1.5 mJ 以上。由于压缩器中的光栅对并不能完全补偿展宽器及其他透射介质引入的色散，激光器系统对色散的

控制还用到了 DAZZLER^[8,9]，它可对二阶甚至高阶色散进行定量控制，使最终的输出脉冲达到傅里叶变换极限的长度。

2.1.3 高次谐波实验

图2.3是国防科技大学的高次谐波实验装置示意图。首先飞秒激光脉冲被聚焦到位于真空腔室的气体池上，产生的高次谐波将与剩余的飞秒激光共线传播至一片 200 nm 厚的铝膜或其他金属膜上。金属膜会挡掉红外飞秒激光而允许一定能量范围内的高次谐波透过。透过的高次谐波经过一块 Hitach 公司的平焦场光栅 (011-0660) 的作用而在光谱上分散开来，并最终聚焦在 X-射线相机上。光栅工作的波长范围为 5–25 nm，其焦平面会覆盖大约 75 mm 的空间范围。相机 CCD 的尺寸为 27.6 × 27.6 mm，因此每次只能采集很小能量范围内的谐波信号。但 CCD 及其连接管道在真空状态下可以滑动，如图中箭头所示，因此可以通过不同位置的多次采集来获取较大能量范围内的谐波信号。

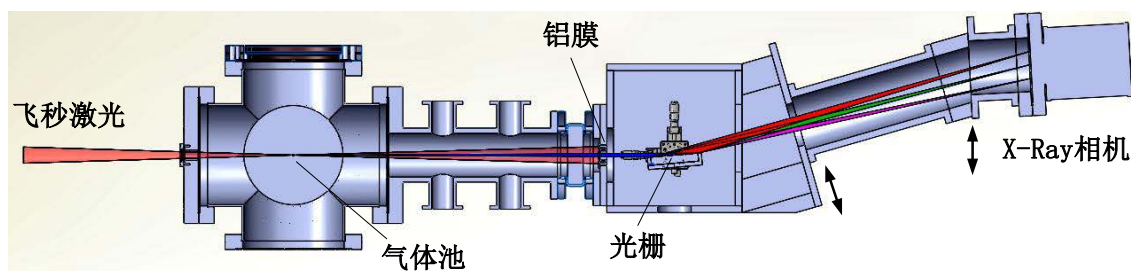


图 2.3 高次谐波实验装置图

图2.4是利用飞秒激光脉冲与氙原子作用得到的 33–45 阶高次谐波信号。X 轴为光栅的色散方向，不同的 CCD 位置代表不同的光子能量，谐波在 X 轴上的宽度与光谱真实宽度和谱仪分辨率相关。在 Y 轴方向上，光栅的会聚能力较弱，各阶谐波的宽度主要由源的发散角决定。

高次谐波的转化效率和光谱分布与激光强度、激光波长、激光脉冲长度及气体原子电离能等各种因素密切相关。通过大量高次谐波的实验，人们总结出高次谐波谱的一些基本规律：

1. 利用电离能越高的气体，能获得高次谐波截止能量就越高；
2. 激光脉冲的波长越长、脉冲长度越短，高次谐波的截止能量越高；
3. 利用线性偏振的激光能获得最高的高次谐波转化效率，而且转化效率随激光椭圆偏度的增加而急剧减小至零。

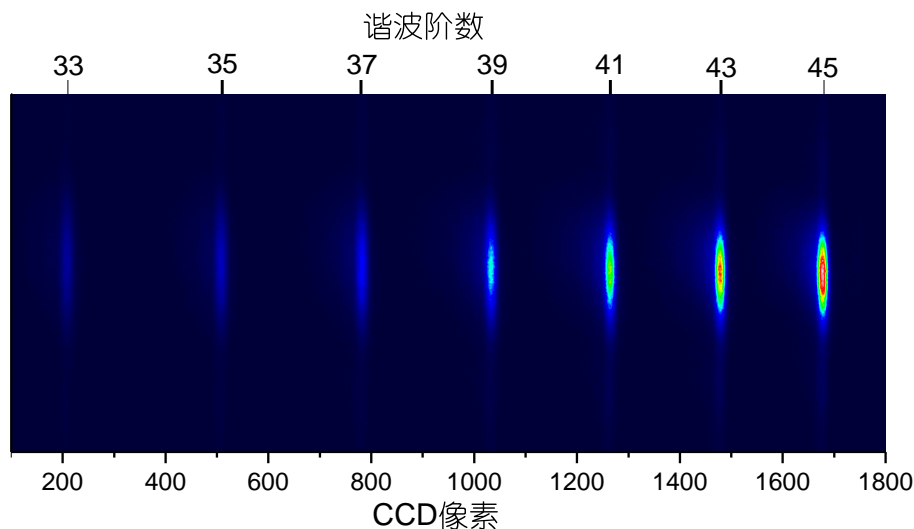


图 2.4 高次谐波信号

4. 当其他条件不变时，高次谐波强度随激光强度的增加而增加直到某一饱和光强。超出饱和光强，高次谐波强度将不再增加甚至减小。

2.2 高次谐波的半经典理论

高次谐波发现后不久，人们逐渐认识到高次谐波是一种由强场诱发的相干的电子-离子碰撞。最初的理论解释是由 Krause 等人^[10]完成的，他们通过求解含时薛定谔方程推导出了高次谐波的截止能量，并和试验结果十分吻合。后来 Corkum 等人^[2]在前人工作^[11-14]的基础上提出了高次谐波产生的半经典模型，也称为“三步模型”。

2.2.1 三步模型

在“三步模型”中，高次谐波的产生可以分成三个步骤，如图2.5所示。第一步，处于强激光场中的原子可以被简化成一个原子实和电子，电子受到原子实的中心势场和外电场的双重作用。产生高次谐波的激光脉冲强度很高，其电场与原子实的中心势场相当，能极大改变中心势场而形成势垒，电子便能够隧穿逃逸成为自由电子。第二步，自由电子只受到激光电场的作用，按照牛顿力学运动规律在激光电场中被加速。显然，不同时刻逃逸的电子将有不同的运动轨迹，其中，某些特定时刻产生的电子会被电场最终带回母原子。第三步，返回的电子与母原子重新结合（再碰撞），并把所有能量转化成光子释放出来。这些能量包含原子的电离能和电子在电场中获得的动能。

利用这“三步模型”，人们不仅能成功推导出高次谐波的截止能量，还能解释高次谐波随激光参数及气体电离能等条件变化的规律。在涉及到能量转化的第二

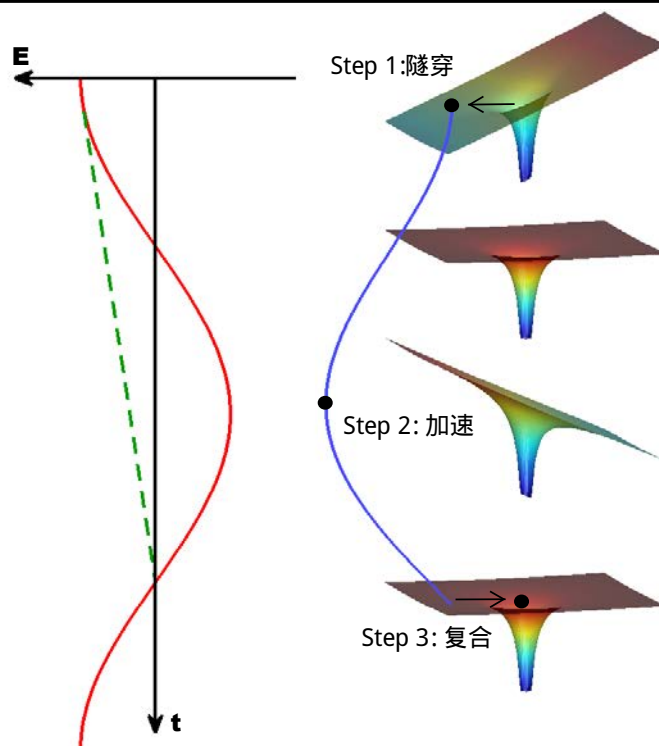


图 2.5 高次谐波的“三步模型”。左图为激光电场随时间的变化，虚线连接了电子的产生和碰撞时刻。右图为不同时刻激光电场对原子势阱的改变及电子的运动轨迹

步，模型完全运用了经典方法，非常有利于人们的理解与分析。下面我们将按照这个模型，分别具体分析这三个步骤，从而深入了解高次谐波产生的规律。

2.2.2 原子在激光场中的电离

在三步模型中，自由电子产生的时刻决定着电子的飞行轨迹和最终能量，因此，探讨原子电离速率随激光场的变化关系非常重要。飞秒激光脉冲单光子能量 ($<2 \text{ eV}$) 要比惰性气体的电离能 ($12.1\text{--}24.5 \text{ eV}$) 小很多，因此需要吸收多个光子才能为基态电子提供跃迁到连续态所需的能量，这种机制称为多光子电离，如图2.6(a)所示。这个过程中，电子在多个激光周期的时间里通过吸收光子逐渐获得电离所需或者超过电离所需的能量，因而电离后的自由电子具有一定的动能。但当激光脉冲的强度进一步增强 ($>10^{14} \text{ W/cm}^2$)，它的电场矢势将和原子实的库仑势共同形与一个势垒，如图2.6(b)所示，使电子能直接以一定的概率隧穿至自由态。势垒高度越低，电子隧穿的概率就越大。由于势垒随激光电场变化，最低的势垒对应着激光电场的峰值，其存在时间是很短的，因此电子的隧穿过程必须很快，可以认为是瞬时的。为了区分多光子电离和隧穿电离，Keldysh 引入了一个无量纲的参数 γ ^[15]，在原子单位下，其表达式为：

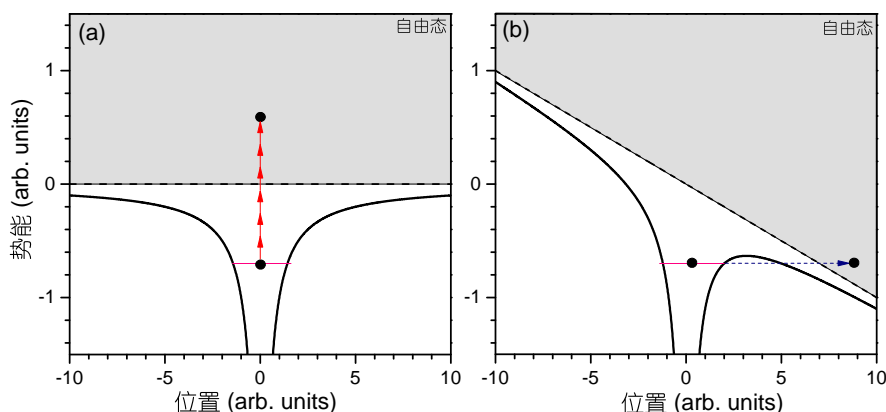


图 2.6 多光子电离与隧穿电离: (a) 多光子电离; (b) 隧穿电离

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (2.8)$$

其中 I_p 是原子的电离能, U_p 是电子在激光场中运动一个周期所获得的平均能量, 称为有质动力能 (Ponderomotive Energy), 不难推出它与激光电场强度 F 和激光频率 ω 的关系为:

$$U_p = \frac{F^2}{4\omega^2} \quad (2.9)$$

γ 的物理意义实际上可以理解为电子隧穿通过势垒所用的时间和低势垒的持续时间 ($\frac{T_0}{2}$) 的比值^[16]。因此, 当 $\gamma \gg 1$ 时, 表明势垒仍然太高, 电子来不及隧穿, 这时多光子电离是主导机制。而当 $\gamma \ll 1$ 时, 表明电子只在低势垒存在的很小一段时间内便能完成隧穿, 所以此时隧穿电离是主导机制。第一章中我们介绍过, 在高次谐波产生过程中, 每半个激光周期都有一个阿秒脉冲产生, 所以其第一步“电离”发生的时间必然小于半个周期, 因而隧穿电离是高次谐波过程的主要电离机制。

Perelomov, Popov 和 Terent'ev 提出了一种适用于类氢原子任意初始态的电离速率计算方法, 称为 PPT 模型^[17]。后来, Ammosov, Delone 和 Krainov 把这种方法进行拓展和简化, 得到了更为简洁的 ADK 模型^[18], 其中电子在激光场中的电离速率可表示为:

$$w_{ADK} = |C_{n^*l^*}|^2 G_{lm} I_p \left(\frac{2F'}{F}\right)^{2n^*-|m|-1} e^{-\frac{2F_0}{3F}} \quad (2.10)$$

式中 $F' = (2I_p)^{3/2}$, F 是激光电场瞬时强度, 随时间 t 不断变化, 有效主量子数 $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}$, 有效轨道角动量量子数 $l^* = n^* - 1$ 。其他两个系数分别为:

$$|C_{n^*l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^* + l^* + 1)\Gamma(n^* - l^*)} \quad (2.11)$$

$$G_{lm} = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!} \quad (2.12)$$

因此, 一个特定原子在激光场中的电离概率随时间的变化可以表示为:

$$P(t) = 1 - e^{-\int_{-\infty}^t w(t')dt'} \quad (2.13)$$

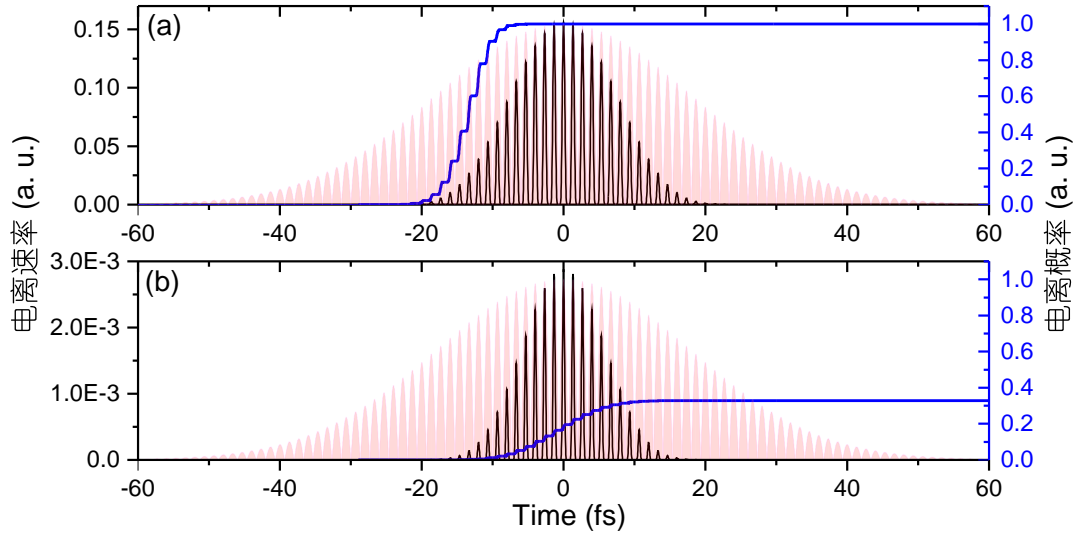


图 2.7 激光场中 (a) 氩原子和 (b) 氟原子的电离速率和电离概率。图中细实线为由式 (2.10) 计算得到的瞬时电离速率, 粗实线为由式 (2.13) 计算得到的电离概率, 浅色填充的区域为激光电场的绝对值。

图2.7是根据 ADK 方法计算的氩原子和氟原子在激光场中的电离速率和电离概率。计算中, 假设激光脉冲长度为 30fs, 中心波长为 800nm, 焦点处的激光强度为 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。可以看出, 电子的电离都是发生在激光电场峰值附近的位置。由于氟原子的电离能 (21.56 eV) 比氩原子的 (15.76 eV) 要高, 整个激光脉冲会电离大约 30% 的氟原子, 却会电离 100% 的氩原子。当原子被全部电离时, 高次谐波产生的第三步中电子与离子复合形成中性原子的过程就不会发生。这表明, 太高的光强反而会由于过度电离而会抑制高次谐波的产生。其实高次谐波产生所需要的激光强度一般在 $\gamma \approx 1$ 的范围, 这时多光子电离和隧穿电离都同时存

在，但却只有隧穿电离对高次谐波的产生有贡献^[19]，这和自由电子在激光场中的运动有关，下节会详细讨论。

2.2.3 电子轨迹

电子在电场中的运动可完全由经典的牛顿力学来进行计算。为了精确定义初始条件，“三步模型”中要用到三个假设：第一，电子的隧穿电离是瞬时发生的；第二，电子的初始速度和初始位移为零；第三，自由电子的运动只受激光电场支配，离子的势场被忽略。这样，在原子单位下，自由电子在一个线性偏振的单色场中的运动方程为：

$$\ddot{x} = -F(t) = -F_0 \cos(\omega_0 t) \quad (2.14)$$

$$\dot{x}(t_0) = 0 \quad (2.15)$$

$$x(t_0) = 0 \quad (2.16)$$

其中 t_0 是电子的电离时刻，也即电子运动的初始时刻， F_0 是激光的电场强度， ω_0 是激光的圆频率。不难解出电子的位移为：

$$x(t) = \frac{F_0}{\omega_0^2} \left\{ \left[\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) \right] + \omega_0 \sin(\omega_0 t_0)(t - t_0) \right\} \quad (2.17)$$

电子从位移为零的位置出发，当位移再次为零时，它就会与离子发生碰撞。解出碰撞发生的时刻便能得出电子在碰撞时的动能，于是我们需要求解如下的方程：

$$x(t) = 0 \quad (t > t_0) \quad (2.18)$$

上式是一个超越方程，无法得出其解析解，通常需要借助数值方法进行精确求解。但式 (2.18) 有其自身特点，也可以用作图法来求解。式 (2.18) 可以转化成如下的形式：

$$\frac{\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0)}{t - t_0} = -\omega_0 \sin(\omega_0 t_0) = \left. \frac{d(\cos(\omega_0 t))}{dt} \right|_{t_0} \quad (2.19)$$

也即：

$$\frac{F(t) - F(t_0)}{t - t_0} = \left. \frac{dF(t)}{dt} \right|_{t_0} \quad (2.20)$$

式 (2.20) 的左端是连接初始时刻和碰撞时刻电场强度的直线的斜率，而右端是初始时刻电场的导数。这表明若在初始时刻作电场的切线，与电场的下一个交点对应的的时间便是碰撞时刻，如图2.8 (a) 所示。图2.8 (b) 给出了四个不同初始时刻电子的运动轨迹，它们的碰撞时刻都可以用作图法得出 (图中虚线)。从图中可

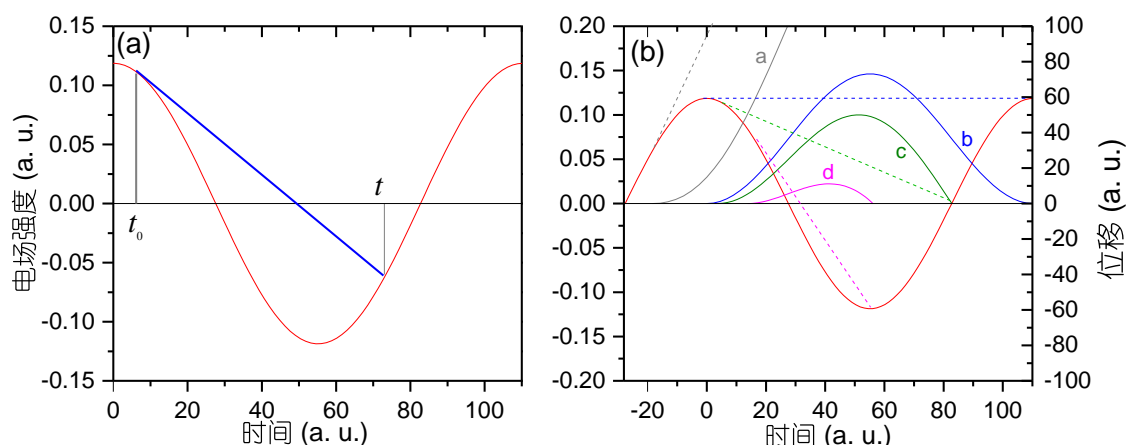


图 2.8 电子轨迹示意图。(a) 作图法求解电子与离子的碰撞时刻，(b) 不同时刻电离的电子的运动轨迹

以看出某些时刻电离出的电子永远不会回到原点（如轨迹 a），而只有在电场极大值之后和电场改变方向之前被电离出来的电子才会与离子发生碰撞（如轨迹 b, c, d）。在这个时间段内，原子刚经历最低势垒，电子以隧穿方式电离占据支配地位，这也是高次谐波起源于隧穿电离的原因之一。

以上是对线性偏振电场情况的分析。若激光场是椭圆偏振的，电子将会在垂直于激光传播方向的二维平面内运动。这时电场可以表述为：

$$\vec{E}(t) = \frac{F_0}{\sqrt{1+\xi^2}} \left[\cos(\omega_0 t) \vec{i} + \xi \sin(\omega_0 t) \vec{j} \right] \quad (2.21)$$

其中 \vec{i} 和 \vec{j} 分别是 x 、 y 方向上的单位矢量， ξ 为电场的椭偏率。对照式 (2.14) 和式 (2.17) 可以得出此时电子的运动轨迹为：

$$x(t) = \frac{F_0}{\omega_0^2 \sqrt{1+\xi^2}} \left\{ \left[\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) \right] + \omega_0 \sin(\omega_0 t_0)(t - t_0) \right\} + (t - t_0)v_{x0} \quad (2.22)$$

$$y(t) = \frac{\xi F_0}{\omega_0^2 \sqrt{1+\xi^2}} \left\{ \left[\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0) \right] - \omega_0 \cos(\omega_0 t_0)(t - t_0) \right\} + (t - t_0)v_{y0} \quad (2.23)$$

$$(2.24)$$

其中 v_{x0} 和 v_{y0} 分别是电子在 x 方向和 y 方向的初始速度。假设它们都为零，那么电子将不会再回到离子实处。如图 2.9 (a) 所示，图中给出了初始相位分别为 0, $\pi/3$ 和 $\pi/2$ 的电子在强度为 $3.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 椭偏率为 1 的电场中运动一个激光周期的轨迹。三条轨迹无法回到原点，因而也就不会有高次谐波的产生。但是电子若在 y 方向上有特定的初始速度，电子便有可能在椭偏光中回到离子实^[20-22]。而且根据 y 方向上的速度分布，可以得出高次谐波产量随激光椭偏率的变化规律为^[23]：

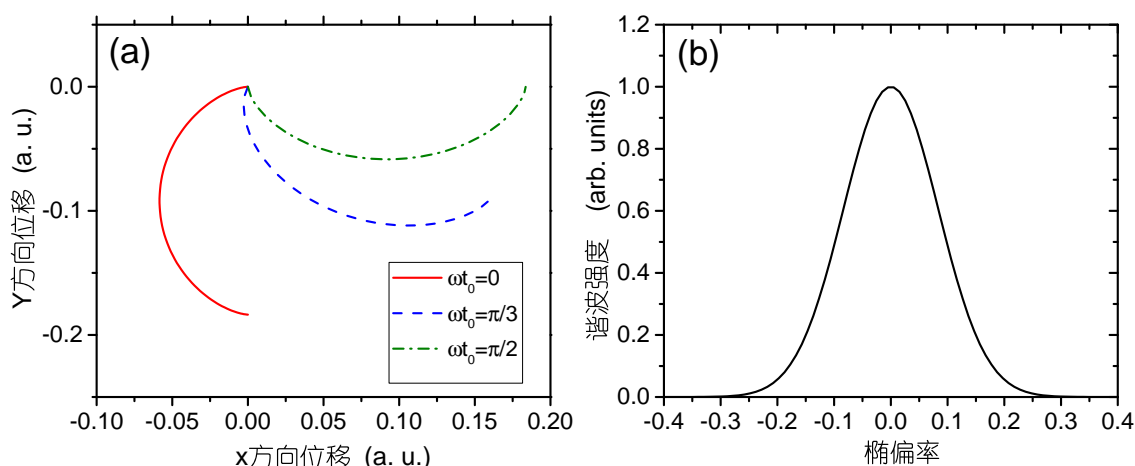


图 2.9 高次谐波产量随激光椭偏率的变化。(a) 电子在椭偏率为 1 的激光场中的轨迹，(b) 氦气 27 次谐波在不同椭偏率下的产量

$$I_{HHG}(\xi) \approx I_{HHG}(\xi = 0)e^{-\frac{\xi^2 \beta^2 F_0 \sqrt{2I_p}}{\omega^2}} \quad (2.25)$$

其中 $\beta = \frac{\sin(\omega t_r) - \sin(\omega t_0)}{\omega(t_r - t_0)} - \cos(\omega t_0)$ ，可以看出高次谐波在不同椭偏率下的产量与复合时间 t_r 相关。图 2.9 (b) 给出了氦气在波长为 800 nm 强度为 $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的激光作用下，其 27 阶谐波随激光椭偏率的变化曲线。当椭偏率为 0.1 时，高次谐波产量减小到 50% 左右；当椭偏率为 0.2 时，高次谐波产量不足线性偏振的 10%。下一章将会讲到，人们基于激光椭偏率对高次谐波产量的这种剧烈影响提出了产生单个阿秒脉冲的方法。

2.2.4 高次谐波能量

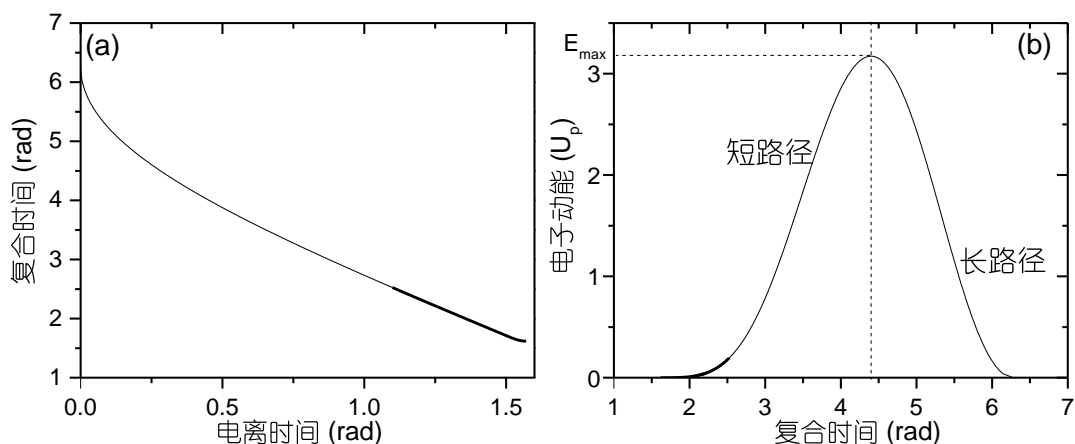


图 2.10 电子的返回时间 (a) 与电子动能 (b)

为了得到电子返回离子时的能量，必须精确解出电子的碰撞时刻。可用利用数值方法对式 (2.18) 进行求解，得到的碰撞时刻与初始时刻的关系如图2.10(a) 所示。然后对式 (2.17) 求导可得出碰撞时刻的速度进而算出电子动能，如图2.10(b) 所示。可以看出电子动能的最大值约为 $3.17U_p$ ，它对应的电子电离时刻和碰撞时刻分别为 0.31 rad 和 4.4 rad ，则电子和离子复合时发射的光子的最大能量为：

$$E_{max} = I_p + 3.17U_p \quad (2.26)$$

式 (2.26) 和实验结果十分吻合，有力证明了“三步模型”机制的正确性。另外，由式 (2.26) 和式 (2.9) 可以看出增大激光波长和激光强度可以增加高次谐波的截止能量。实验中，由于原子电离的限制，激光光强必须低于某一数值，通常把电离 98% 的原子所需的光强称为该种原子的饱和光强。超过饱和光强时，谐波的产量会受到抑制。因此，大幅提高截止能量较为可行的方法是增加基频光的波长。这也是进一步增大阿秒带宽，从而得到更短阿秒脉冲的方法之一。

在图2.10(b) 中，除了最大动能之外，其他能量的电子都对应两个不同的复合时间，分别位于图中竖直虚线的两侧。通常把复合时间较晚的称为长路径，复合时间较早的称为短路径。一般情况下，同一能量的高次谐波光子有同时来自长路径和短路径的贡献。对于不同的路径，电子（或光子）能量与光子发射时间的关系（脉冲啁啾）完全相反。对于短路径，能量越高的电子发射时间越晚，称之为正啁啾，而长路径为负啁啾。若要得到很短的阿秒脉冲，必须要对这种啁啾进行补偿，使不同能量的光子在时间上同步。但由于长短路径有不同的啁啾，不可能对它们同时进行补偿，所以通常在实验上通过相位匹配或者其他手段滤除来自长路径的谐波光子，进而只对短路径进行补偿。

“三步模型”的半经典理论非常直观地阐明了高次谐波产生的内在机制，精确预言了高次谐波的截止能量，并合理解释了高次谐波的其他特性。但它并不能更进一步地计算各光谱分量的相对强度及相对相位等重要信息。Lewinstein 后来在强场近似的前提下得出了含时薛定谔方程的解析解^[24]，这种基于量子理论的结果同样清晰地表明高次谐波的产生经历着与半经典理论相同的三个步骤。尽管现在人们已能对含时薛定谔方程进行直接的数值求解，但“三步模型”依然是分析高次谐波的有力工具。

2.3 相位匹配

“三步模型”是单原子高次谐波辐射的机理，为了得到较强的高次谐波信号，必须增加参与高次谐波辐射的气体原子的数目。由于宏观信号的强度是所有原子辐射的相干叠加，那么它们之间的相位差便成了决定信号强度的关键因素。对于

某阶谐波而言，若来自各个原子辐射的相位相同，就能相干叠加得到最大信号，这时高次谐波的产生过程就是相位匹配的，如图2.11(a)所示。通常情况下，高次谐波的转化效率在 10^{-6} 左右，也即 1 mJ 的激光脉冲只能得到大约 1 nJ 的高次谐波信号，因此，实现大量原子的相位匹配以提高高次谐波强度尤为重要。为了分析如何实现相位匹配，需要从高次谐波与基频激光场的波动方程入手。本文将按照文献^[16]的思路对高次谐波相位匹配展开讨论。

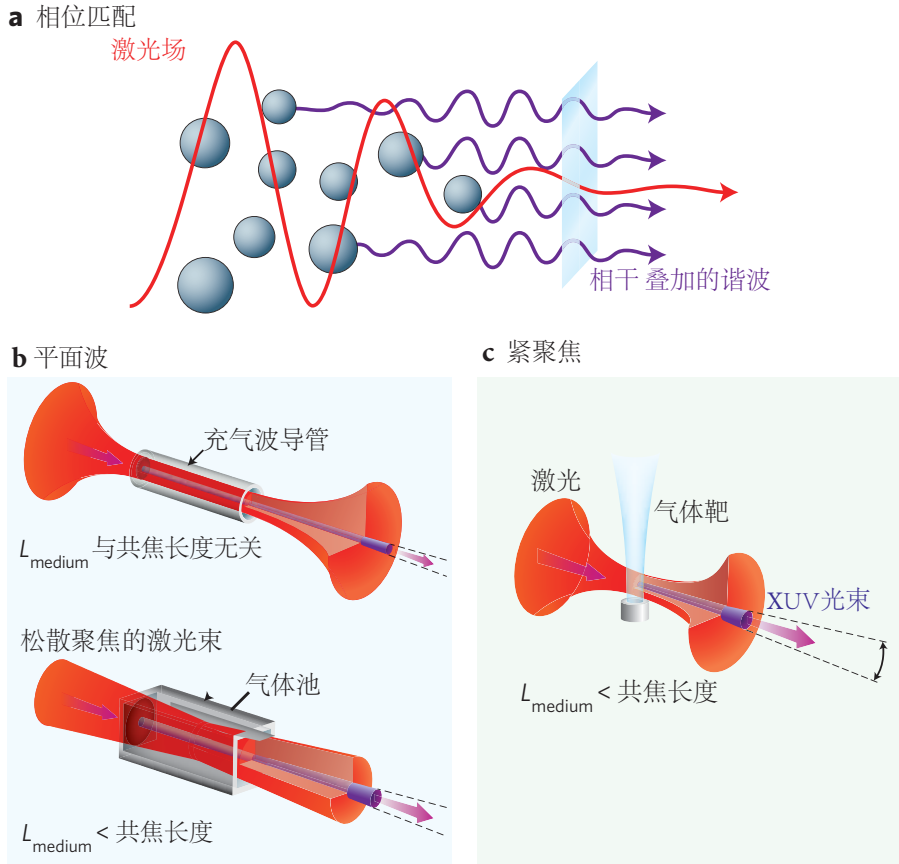


图 2.11 相位匹配示意图^[25]: (a) 相位匹配的高次谐波辐射; (b) 利用平面波产生高次谐波; (c) 紧聚焦的高斯光束产生高次谐波

高次谐波与激光场在介质中的传播耦合方程可以写为：

$$\nabla^2 \vec{E}_q(\vec{r}) + k_q^2 \vec{E}_q(\vec{r}) = -\mu_0 \omega_q^2 \vec{P}_q(\vec{r}) \quad (2.27)$$

其中 $\omega_q = q\omega_1$ 是 q 次谐波的频率， $\vec{E}_q(\vec{r})$ 是 q 次谐波的振幅， k_q 是其相应的传播常数，而 $\vec{P}_q(\vec{r})$ 是介质 q 阶非线性极化强度的振幅，它与高次谐波和基频激光场的总电场相关。但通常情况下，基频激光场要远远强于高次谐波电场，可以认为

$\tilde{P}_q(\vec{r})$ 只是基频激光场的函数。假设激光和高次谐波都是线性偏振的，在近轴近似下，式 (2.27) 可以写成：

$$\nabla_T^2 \tilde{A}_q(\vec{r}) - 2ik_q \frac{\partial}{\partial z} \tilde{A}_q(\vec{r}) = -\mu_0 \omega_q^2 \tilde{P}_q(\vec{r}) e^{i(k_q - qk_1)z} \quad (2.28)$$

其中 $A_q(\vec{r})$ 是 q 次谐波在偏振方向的标量振幅，相位匹配的目的便是使 $A_q(\vec{r})$ 最大。

式 (2.28) 左端的第一项 $\nabla_T^2 \tilde{A}_q(\vec{r})$ 是对谐波在横截面方向的微分，因此我们可以把问题分成如图 2.11(b) 和 (c) 所示的两种情况进行讨论：第一种情况下，假设基频激光和高次谐波都是平面波。这可以在实验中利用光纤波导或者松散聚焦来实现，在激光和介质作用的区域内，激光场可以近似看做平面波。这样 $\nabla_T^2 \tilde{A}_q(\vec{r}) = 0$ ，问题进一步简化；第二种情况下，假设基频激光和高次谐波都是高斯光束，这和常见的高次谐波产生方案情况相同，一般是由于激光能量不高，必须利用紧聚焦来获得高光强。

2.3.1 平面波的相位匹配

对于平面波，式 (2.28) 可简化为：

$$2ik_q \frac{\partial}{\partial z} \tilde{A}_q(z) = \mu_0 \omega_q^2 \tilde{P}_q(A_1) e^{i(k_q - qk_1)z} \quad (2.29)$$

其中式子左边的 $\tilde{k}_q = \frac{\omega_q}{c} \sqrt{\epsilon \omega_q} = \frac{\omega_q}{c} [n_R(\omega_q) - in_I(\omega_q)]$ ，取复数形式是由于要把介质的吸收也考虑在内。对该式积分便能得到 q 次谐波的振幅：

$$\tilde{A}_q(z) = i \frac{\mu_0 \omega_q^2}{2k_q} \tilde{P}_q(\tilde{A}_1) \int_0^z e^{i\Delta k_q z'} e^{-\alpha_q z'} dz' \quad (2.30)$$

这里考虑到激光到高次谐波的转化率很低，可以认为激光在传播方向上的振幅不变，所以 $\tilde{P}_1(\tilde{A}_1)$ 并不参与积分。式中 $\alpha_q = \frac{\omega_q}{c} n_I(\omega_q)$ 是介质对 q 次谐波的吸收系数， Δk_q 为：

$$\Delta k_q = \frac{\omega_q}{c} n_R(\omega_q) - qk_1 = \frac{q\omega_1}{c} [n_R(\omega_q) - n_R(\omega_1)] \quad (2.31)$$

式 (2.30) 中积分运算符里的两项分别表示介质色散和介质吸收对于高次谐波产量的影响。

2.3.1.1 无吸收介质的相位匹配

为了更清楚地讨论介质色散的影响，我们首先忽略掉介质的吸收，即 $\alpha_q = 0$ 。更一般地，介质沿传播方向并不均匀， Δk_q 可能随着 z 变化，则高次谐波的振幅为：

$$\tilde{A}_q(\vec{z}) = i \frac{\mu_0 \omega_q^2}{2k_q} \tilde{P}_q(A_1) \int_0^z e^{i\Delta k_q(z')z'} dz' \quad (2.32)$$

则相位匹配的条件是积分运算符中的相位不随距离 z 变化，也即：

$$\frac{d}{dz} [\Delta k_q(z)z] = 0 \quad (2.33)$$

式 (2.32) 的积分结果为：

$$I_q(z) = \frac{c\epsilon_0}{2} |\bar{A}_q(\vec{z})|^2 = \frac{ck_q^2}{8\epsilon_0} |\bar{P}_q(\bar{A}_1)|^2 z^2 \quad (2.34)$$

上式表明，当相位匹配实现时，高次谐波信号会随着介质长度的增加而呈平方关系增长。结合式 (2.31) 和式 (2.33) 可以发现，实现相位匹配的一种情况是介质对于高次谐波和基频光的折射率相同。对于单一的介质，不同频率电磁波的折射率一般是不同的，但产生高次谐波的气体靶内有中性气体原子和光电离形成的等离子体两种介质，通过调节二者的比例是可以让式 (2.33) 成立的。中性气体原子的折射率 n_a 和等离子体的折射率 n_p 与频率的关系分别为：

$$n_a(\omega_q) \approx 1 + \frac{e^2}{2\epsilon m_e} \frac{N_a}{\omega_r^2 - \omega_q^2} \equiv 1 + \Delta n_a \quad (2.35)$$

$$n_p(\omega_q) \approx 1 - \frac{e^2}{2\epsilon m_e} \frac{N_e}{\omega_q^2} \quad (2.36)$$

其中 N_a 和 N_e 分别代表中性原子数密度和自由电子数密度， ω_r 是由气体原子基态和第一激发态能量决定的共振频率。表2.1中列出了惰性气体的相关参数。对于高次谐波， $q \gg 1$ ，则其中性气体中的折射率 $n_a \approx 1$ ，及在等离子体中的折射率 $n_p \approx 1$ ，所以满足相位匹配条件只需要基频光在介质中传播的折射也为 1。设气体的电离概率为 p ，则介质对基频光的总折射率为：

$$n_R(\omega_1) = 1 + \frac{e^2 N}{2\epsilon m_e} \left(\frac{1-p}{\omega_r^2 - \omega_1^2} - \frac{p}{\omega_1^2} \right) \quad (2.37)$$

为了满足相位匹配，可以通过调光强使气体的电离概率为 $p = \left(\frac{\omega_1}{\omega_r}\right)^2$ 。各种惰性气体满足相位匹配所要求的电离概率见表2.1：

表 2.1 惰性气体相位匹配参数表

气体种类	氦 (He)	氖 (Ne)	氩 (Ar)	氪 (Kr)	氙 (Xe)
$\Delta n_a(\times 10^{-4})(1atm)$	0.36	0.67	2.8	4.27	7.02
p (%)	0.5	0.9	3.8	5.4	8.6

2.3.1.2 介质吸收的影响

对于吸收较强的介质，我们并不能像式 (2.34) 建议的那样一直增加介质的长度。为了把介质的吸收加入到相位匹配过程中来，对式 (2.30) 直接积分有：

$$\tilde{A}_q(z) = i \frac{\mu_0 \omega_q^2}{2k_q} \tilde{P}_q(\tilde{A}_1) \frac{e^{i\Delta k_q z} e^{-\alpha_q z} - 1}{i\Delta k_q - \alpha_q} \quad (2.38)$$

引入物理量相干长度 $L_c = \frac{\pi}{\Delta k_q}$ 和吸收长度 $L_a = \frac{1}{2\alpha_q}$ ，则可由上式得高次谐波的强度为：

$$I_q(z) = \frac{ck_q^2}{2\epsilon_0} \left| \tilde{P}_q(\tilde{A}_1) \right|^2 \frac{L_a^2}{1 + 4\pi^2 \left(\frac{L_a}{L_c} \right)^2} \left[1 + e^{-\frac{z}{L_a}} - 2 \cos \left(\frac{\pi z}{L_c} \right) e^{-\frac{z}{2L_a}} \right] \quad (2.39)$$

可以看出，最终谐波强度受到相干长度，吸收长度和介质长度的共同影响。图2.12给出了不同相干长度时，高次谐波强度随介质长度时的变化关系。当相干长度和吸收长度相当或者更小时，相位匹配对信号强度起支配作用，这时的谐波信号会随着介质长度的增加而振荡。为了得到最大谐波信号，必须保持介质长度小于吸收长度。而当相干长度远大于吸收长度时，相位匹配得到很好的满足，谐波强度会随介质长度的增加而增加直到饱和。饱和信号所对应的介质长度大约是吸收长度的 5 倍。

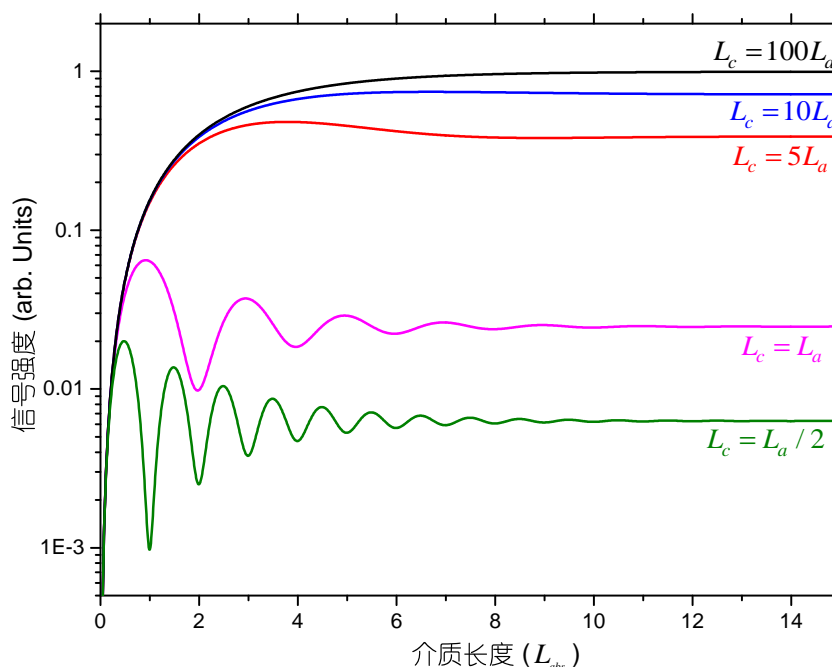


图 2.12 考虑介质吸收时高次谐波强度的相位匹配

注意到相干长度、吸收长度以及极化强度 $\tilde{P}_q(\tilde{A}_1)$ 都是和气体密度或者气压相关的物理量，因此改变气压也会影响高次谐波的强度。为了更清楚表明气压

在相位匹配中的作用，通常用相干长度—气压积 $L_{pc} = L_c P$ 和吸收长度—气压积 $L_{pa} = L_a P$ 来分别代替相干长度和吸收长度，不难证明 L_{pc} 和 L_{pa} 是与气压无关的量。同时把极化强度 $\tilde{P}_q(A_1)$ 写成单原子的偶极子响应 $\tilde{d}_q(\tilde{A}_1)$ 的形式：

$$\tilde{P}_q(\tilde{A}_1) = N_0 P(1-p)\tilde{d}_q(\tilde{A}_1) \equiv N_0 P(1-p)\left|\tilde{d}_q\right|e^{i\phi_d(I_1(r,z))} \quad (2.40)$$

其中 N_0 是单位压强下的原子数密度，它只与温度有关； $\phi_d(I_1(r,z))$ 是偶极子的固有相位，是光强的函数。则式 (2.39) 可化为：

$$I_q(z) = \frac{ck_q^2}{2\epsilon_0}\left|\tilde{d}_q(\tilde{A}_1)\right|^2 N_0^2(1-p)^2 \frac{L_{pa}}{1+4\pi^2\left(\frac{L_{pa}}{L_{pc}}\right)^2} \left[1 + e^{\frac{zP}{L_{pa}}} - 2\cos\frac{\pi zP}{L_{pc}} e^{-\frac{zP}{2L_{pa}}}\right] \quad (2.41)$$

上式表明增加气压和增加介质长度对谐波强度的影响是等价的。

2.3.2 高斯光束的相位匹配

上一节讨论了平面波的相位匹配，然而多数情况下的高次谐波实验仍采用如图2.11 (c) 所示的紧聚焦方案以获得较高的激光强度，这种情况的相位匹配机理就更加复杂。来自激光器的基频激光场一般是高斯光束，在焦点附近激光场可以表述为：

$$\tilde{A}_1(r,z) = A_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{-i\frac{z}{2R(z)}} e^{i\psi(z)} \quad (2.42)$$

其中 A_0 是激光电场在焦点处的振幅； w_0 是焦点处的光束半径； $w(z) = w_0 \sqrt{1+z^2/Z_R^2}$ 是光斑在任意位置 z 处的半径； $Z_R = \pi w_0^2/\lambda_1$ 称为瑞利长度； $R(z) = z + z^2/z$ 是任意 z 处的曲率半径； $\psi(z)$ 称为 Gouy 相位：

$$\psi(z) = \tan^{-1}\left(\frac{z}{Z_R}\right) \quad (2.43)$$

把式 (2.42) 代入式 (2.28) 可得：

$$\frac{\partial}{\partial z}\tilde{A}_q(r,z) = -\frac{i}{2k_q}\nabla_T^2\tilde{A}_q(r,z) - i\frac{\mu_0\omega_q^2}{2k_q}PN_0(1-p)\tilde{d}_q[\tilde{A}_1(r,z)]e^{i\Delta k_q z} \quad (2.44)$$

其中单原子偶极子响应为：

$$\tilde{d}_q[\tilde{A}_1(r,z)] = \left|\tilde{d}_q\right|e^{i\phi_d(I_1(r,z))}e^{-iqk_1\frac{r^2}{2R(z)}}e^{iq\psi(z)} \quad (2.45)$$

若只考虑 z 轴上的谐波信号，对照式 (2.29) 可知 q 阶极化强度与高次谐波的相位差为：

$$\Delta\phi_q = \phi_d(I_1(r,z)) + q\psi(z) + \Delta k_q(z)z \equiv \phi_d + \phi_G + \phi_k \quad (2.46)$$

其中第三项为 $\phi_k = \Delta k_q(z)z$ ，代表色散引起的相位差，可以通过调节电离进行控制；第二项 $\phi_G = q\psi(z)$ 为高斯光束 Gouy 相位引起的相位差；第一项 ϕ_d 为偶极子固有相位，它可近似表述为光强的线性函数^[24]：

$$\phi_d(I_1(r, z)) \approx \alpha I_1 = \frac{I_0}{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (2.47)$$

式中正比系数 α 和电子在电场中的运动时间即长短路径有关。对于短路径，有

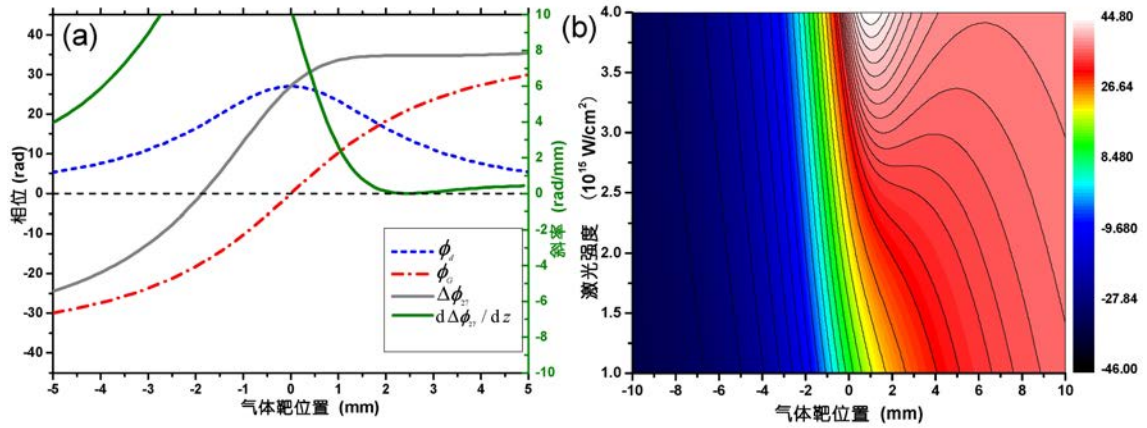


图 2.13 高斯光束的相位匹配

$\alpha \approx 1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ ，而对于长路径， $\alpha \approx 25 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ 。若 $\Delta\phi_q$ 不随 z 变化，就表示达到相位匹配。忽略掉式 (2.46) 的第三项色散的影响，则相位匹配要求 Gouy 相位和偶极子固有相位相互补偿。当 $z > 0$ 时， ϕ_G 随 z 的增加而增加，而 ϕ_d 随着 z 的增加而减小，在特定条件下，二者是有可能相互补偿的。例如一束中心波长为 800 nm ，焦斑 $w_0 = 30 \mu\text{m}$ ，瑞利长度 $z_R = 2.5 \text{ mm}$ ，光强为 $2.7 \times 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 的激光束与惰性气体原子产生的 $q = 27$ 阶谐波的相位差如图 2.13 (a) 所示，图中虚线为偶极子固有相位 ϕ_d ，点划线为 Gouy 相位 ϕ_G ，浅色实线为总的相位差 $\Delta\phi_q$ 。为了更清楚地表明 $\Delta\phi_q$ 随 z 的变化关系，我们也画出了它的导数，如图中深色实线所示。可以看出，在 $z \approx 2.5 \text{ mm}$ 的位置总相位差不随 z 变化，相位匹配得以实现。2.13 (b) 给出了不同激光强度下总相位差随气体靶位置的变化关系，图中实线为等值线，在斜率为零的地方可以实现相位匹配。可以发现在激光光强小于 $2.7 \times 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 时，不存在任何位置可以实现相位匹配；在激光光强在这个数值附近时，在 $z = 2 - 3 \text{ mm}$ 的范围内都可以实现相位匹配。而当激光更强时，存在两个较小的区域可以实现相位匹配。但不论在任何光强条件下，能实现相位匹配的位置总是在焦点之后。

2.4 基于氙气—氢气靶阵列的准相位匹配

基于上一节的高次谐波相位匹配基本原理，人们提出了各种相位匹配或者准相位匹配技术，包括松散聚焦^[26]，调制基频光强^[27, 28]，调制气体气压^[29, 30]，反向传播光束^[31-33]及多气体靶^[34, 35]等等。本节我们介绍一种用氙气和氢气两种气体靶交替排列的准相位匹配方案，并对其内在机制进行讨论。这种方案由 Willner 等人^[36, 37]在实验上首先实现，其基本思想是利用氙气作为高次谐波的源，并设定其气压和长度之积等于相干长度—气压积 L_{pa} ，这样各处氙原子辐射的谐波相位差不会大于 π ，因而会相干相长。在氙气靶之后，激光便领先高次谐波 π 相位。然后再加入氢气靶，利用氢气的色散让激光再次与谐波同相位。他们在实验中成功实现了 41 阶谐波的准相位匹配，观测到了谐波信号随氙气靶数量呈平方关系变化，如图 2.15 所示。需要注意的是，作用调整相位作用的氢气靶并不允许产生高次谐波，否则就会因为相位差大于 π 减小信号。Willner 等人的解释是氢气的电离能 15.45 eV 比氙气的 (15.76 eV) 小，因此，一定光强下，可以把氢气完全电离而氙气仍能有效产生高次谐波。然而这种解释却不并正确，因为人们早已证实氢气要比氙气更难电离^[38, 39]。为了分析氙气—氢气靶阵列的准相位匹配机制，我们需要对这两种气体分别产生高次谐波的情况进行分析。

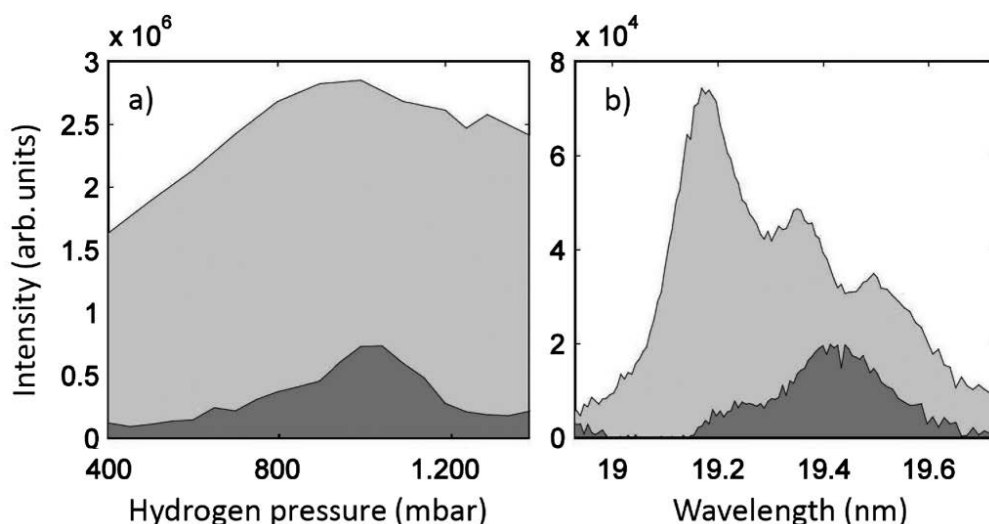


图 2.14 用氙气—氢气靶阵列实现准相位匹配^[37]。图中深色填充的为两个氙气靶的信号，浅色填充的为四个氙气靶的信号。(a) 为 41 阶谐波信号随氢气压强的变化，氙气压强稳定为 2 mbar。(b) 为氢气压强为 1 mbar 时 41 阶谐波信号的光谱分布

2.4.1 实验装置

我们的高次谐波产生与探测装置如图2.15所示。入射飞秒激光脉冲的能量可达 3 mJ, 脉冲长度为 30 fs, 中心波长为 780 nm, 重复频率为 1 KHz。激光脉冲被一个焦距为 500 mm 的银镜聚焦到长度为 1 mm 的气体池上产生高次谐波。剩余的基频光被 300 nm 厚的铝膜或者钛膜滤掉。然后高次谐波被焦距为 270 mm 轮胎镜聚焦到第二个氦气气体靶上, 电离出的电子在一块磁铁的作用下进入一个 3 m 长的飞行谱仪进行能量分辨。由于自由电子是高次谐波单光子电离产生的, 所以其能量等于高次谐波光子能量减去氦原子电离能。因此我们能通过测量电子能谱而得到高次谐波的光谱。

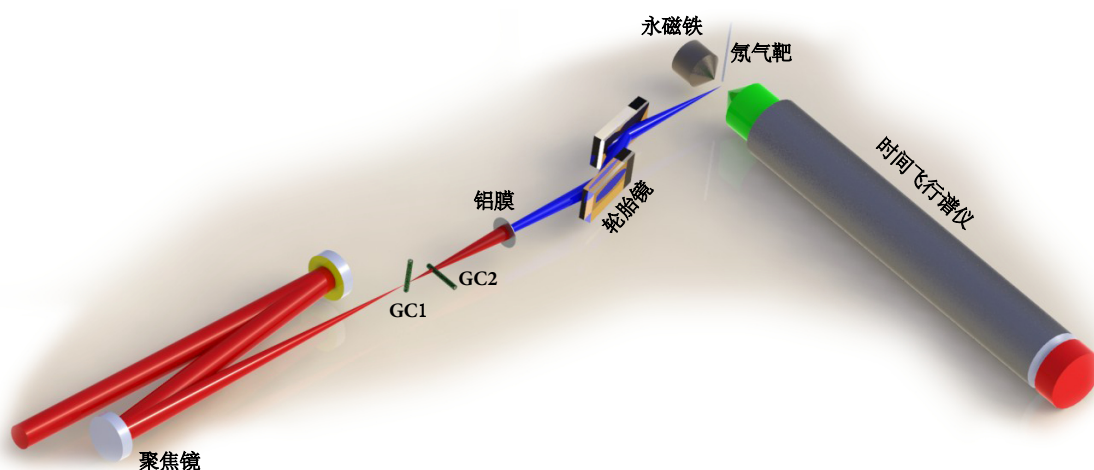


图 2.15 高次谐波产生与测量装置图

实验中光强是通过光阑大小来控制的, 但要通过高次谐波的截止边才能较为准确地确定。另一个可能影响实验结果的因素是氦气和氢气在焦点处的实际气压。通常的高次谐波的实验中, 人们都是通过控制进口处的气压来控制参与作用的原子密度。但一般情况下气体在气压表之后还要穿过一段长长的管道才能进入气体池, 然后由洞口喷出并与激光作用。因而气体在洞口处的压强与气体在管道中的流动有关, 这和进口气压及气体自身特性都有关系。所以虽然在实验中我们能保证氦气和氢气具有相同的进口气压, 但却并不意味着在与激光作用的洞口处气压也相同。为了对此进行确认, 我们在产生谐波的气体池 (如图中的 GC1) 之后放了另一个完全一样的气体池 (如图中的 GC2) 用来对谐波信号进行吸收, 结果如图2.16所示, 其中浅色数据点为氢气在进口气压为 5 torr (实心方块点) 和 10 torr (空心圆点) 时的谐波透过率, 深色点为氦气相应的气压下的透过率。浅色 (深色) 实线和虚线分别为由光电离截面^[40] 求得的 5 torr 和 10 torr 的氢气 (氦气) 的理论

透过率。可以发现在我们的实验装置中，氙气和氢气在气体池中的气压与进口气压几乎完全一致。

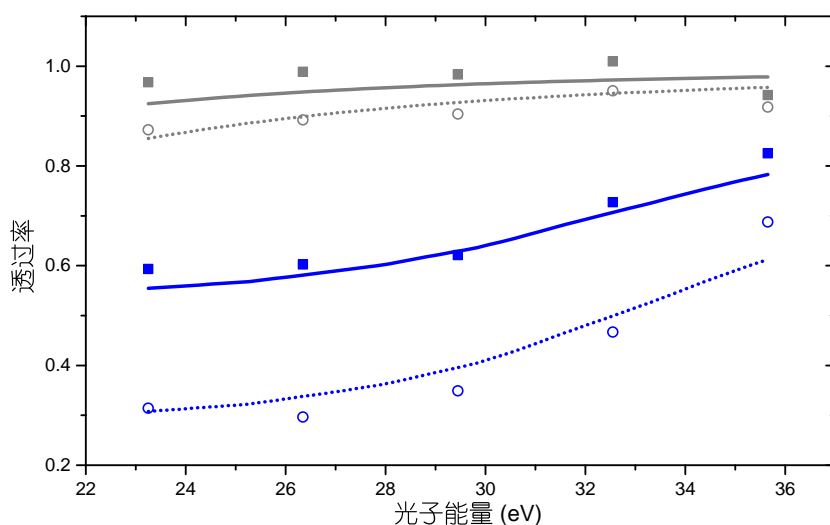


图 2.16 气体池中气压的测量。浅色（深色）数据点为氙气（氢气）在进口气压为 5 torr（实心方块点）和 10 torr（空心圆点）时测得的谐波透过率。浅色（深色）实线和虚线分别为由光电离截面求得的 5 torr 和 10 torr 的氙气（氢气）的理论透过率

2.4.2 氙气和氢气的高次谐波

首先，我们测量了氙气和氢气高次谐波产量随压强的变化关系。图2.17 (a) 和 (b) 分别是氙气和氢气的第 27 阶谐波信号随气压的变化曲线，实验中焦点处的光强为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。图中的圆点和方点是实验测得的谐波信号强度，分别对应于不同的探测气压。之所以要改变探测气压是因为太多的光电子会对飞行谱仪的测量造成误差，因此当高次谐波很强时，必须减小探测气体的压强来减小光电子数量。光电子数量与探测气体压强可以近似认为是正比关系，因此，不同探测条件下的信号可以通过气压来进行校正。从图中可以看出氢气和氙气随着气压的增加而增加直到饱和，而且二者具有大致相同的饱和长度—气压积。图中的虚线是对饱和之前的数据点的所作的线性拟合，结果表明谐波强度的增长大概与气压成平方关系，是相位匹配的表现。此外，对比图2.12，可以看出这两种气体在产生高次谐波时都有着较大的相干长度，也即 $\Delta k_{27} \ll 1$ ，这就表明在实验中使用的强光条件下，这两种气体靶中的中性原子和等离子体的色散能很好地相互抵消。这也间接地表明此时的氢气并没有被完全电离。

然后我们测量了氙气和氢气高次谐波产量随光强的变化关系，并与理论计算的结果进行了比较。实验中两种气体的压强都为 5 torr，测得的第 19 阶谐波产量随光强的变化如图2.18 (a) 所示。图中实线（虚线）是由时域密度泛函理论计

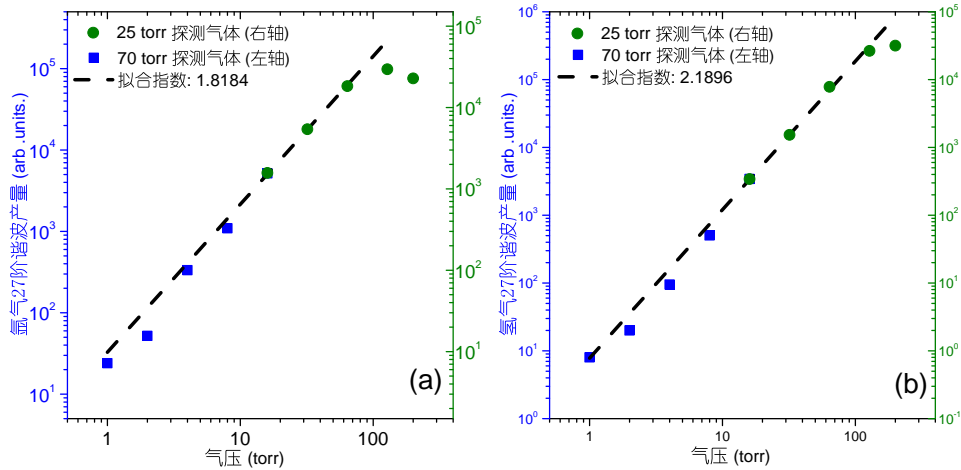


图 2.17 氩气 (a) 和氢气 (b) 高次谐波产量随压强的变化关系

算得到的氩气 (氢气) 在相应条件下的 19 阶谐波产量, 详细计算方法请参照文献^[41-45]。从图2.18 (a) 中可以看出, 不管在理论计算还是在实验测量中, 氢气谐波的产量总比同等条件下氩气小一个量级, 这和以前报道的实验结果一致^[46]。氩气和氢气的 19 次谐波都随着光强的增加而增加直到光强达到 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。超出这个光强, 两种气体都几乎被全部电离, 中性原子的消失加上相位匹配被破坏导致谐波产量的下降。为了验证这点, 我们同样算出了这两种气体的电离概率随光强的变化, 如图2.18 (b) 所示。当光强大于 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 二者的电离概率都接近于 1。在光强较弱时, 氢气的电离概率总是小于氩气的电离概率。所以氩气-氢气靶阵列的相位匹配并不是由氢气全部被电离引起的。氢气作为谐波的产生介质, 有着和氩气相同的相位匹配特性。

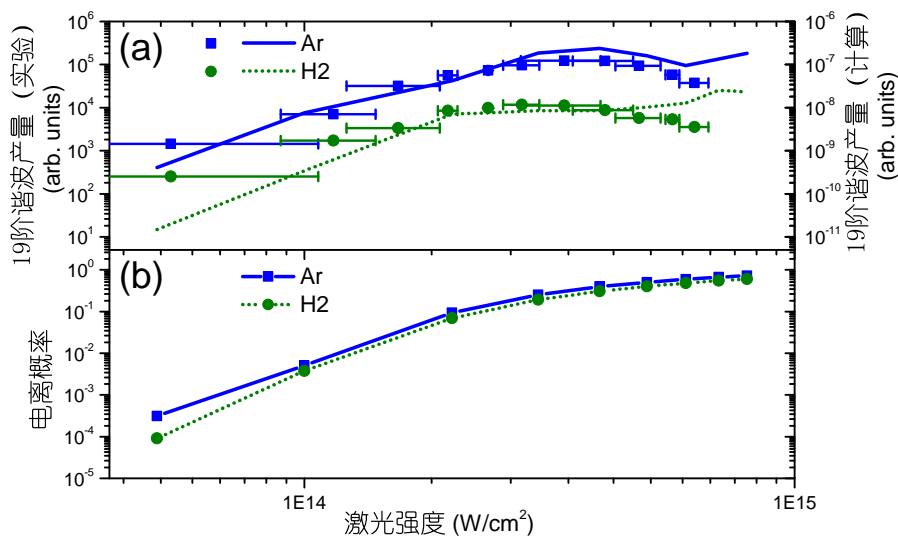


图 2.18 氩气和氢气 19 次谐波产量 (a) 和电离概率 (b) 随光强的变化关系

2.4.3 准相位匹配机理

事实上,在这种方案中,准相位匹配的实现并不一定要求氢气完全电离。由式(2.37)可知,在氢气并不被完全电离的情况下,我们可以通过调节氢气的气压(等价于式中的离子数密度 N)来补偿激光与高次谐波的相位。因此,只要氢气不强烈吸收或者不产生强度能和氩气谐波强度相比拟的高次谐波都是可以实现准相位匹配的。图2.18(a)显示了氢气19阶谐波的强度的确要比氩气小一个量级。其它阶次的谐波强度随光强变化如图2.19所示。随着激光能量的增加,氩气谐波的截止能量一直延伸到超过铝膜的吸收截止边。但是对于氢气,60 eV以下的信号总是很弱,超过70 eV几乎没有谐波产生。因此,氢气引入的相位差及弱高次谐波辐射才是是氩气-氢气靶阵列准相位匹配得以实现的原因。

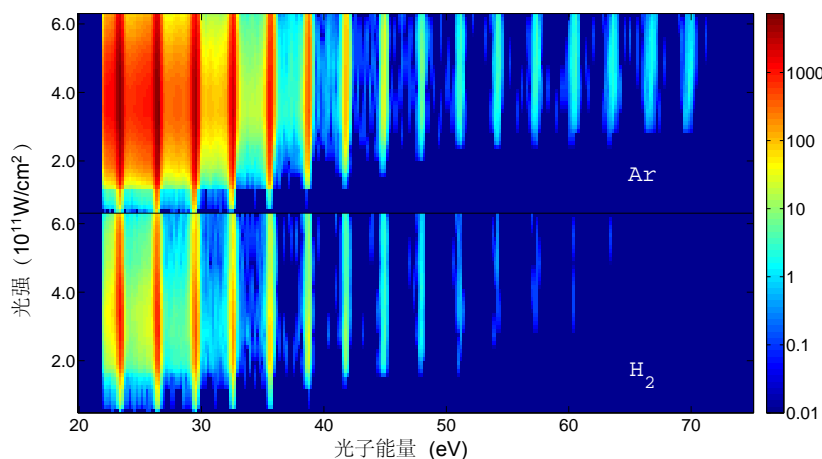


图 2.19 氩气和氢气高次谐波产量随光强的变化关系

氢气产生的谐波很弱的根本原因在于它在相应波段的光电离截面很小。这不仅决定了氢气对谐波的吸收很小,也同样决定了在第三步中电子与离子复合的概率也很小。图2.20(a)比较了氢气和氩气在20~75 eV的范围内光电离截面的大小。图(b)是光强为 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时产生于氩气(虚线)和氢气(实线)的谐波谱强度。可以看出氩气和氢气的谐波产量随光子能量的变化遵循着与光电离截面大致相同的规律。为了更清楚地比较,图(c)给出氢气与氩气光电离截面的比值(虚线)和二者谐波产量的比值(圆点)。这两种比值非常接近,表明光电离截面对于氩气和氢气的谐波产量起着决定性作用。而氢气的光电离截面在很大的光谱范围内比氩气要低一个数量级,所以即使氢气靶仍然会产生高次谐波而且相位差大于 π ,但其强度太弱而不足以对氩气的谐波产量造成明显损失。同时这种小电离截面也决定了氢气对谐波的吸收很弱,因而最终能实现准相位匹配。

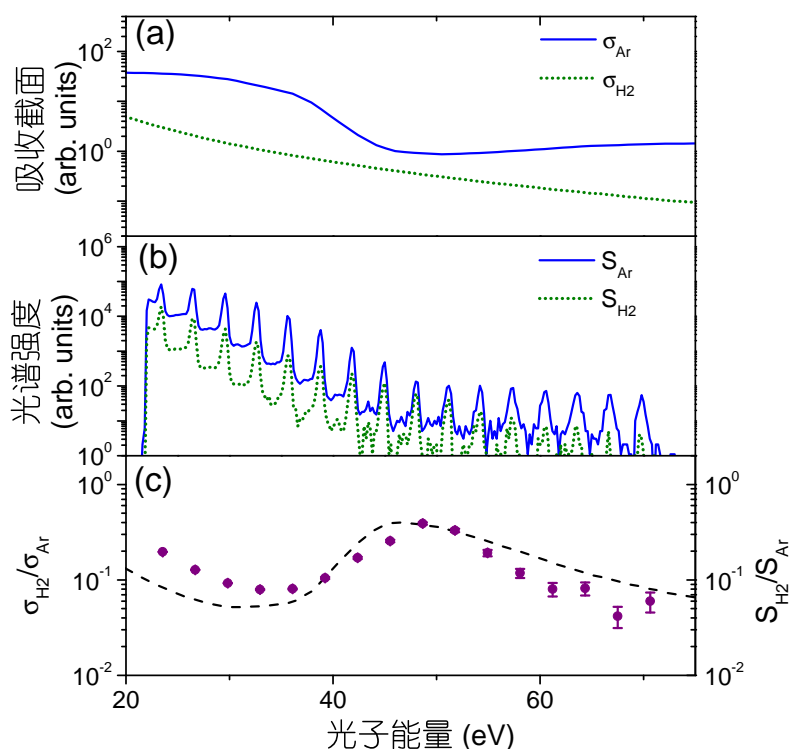


图 2.20 氢气与氩气光电离截面与谐波产量的比较。(a) . 氢气 (实线) 与氩气的光电离截面; (b) . 光强为 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时, 氢气 (实线) 与氩气的高次谐波光谱; (c) 氢气与氩气光电离截面的比值 (虚线) 和二者谐波产量的比值 (圆点)

当然, 这种相位匹配机制并不局限于氩气-氢气靶阵列, 任何光电离截面相差悬殊的两种气体之间都有可能通过这种机制实现准相位匹配。而 Willner 等人提出的利用完全电离气体的方法来实准相位匹配的方案则可以用于电离能相差悬殊的两种气体之间, 如氦气-氢气靶阵列等。

本章小结

高次谐波是我们获得阿秒脉冲的基础, 因而对其内在机理及转化效率的研究直接关系到阿秒脉冲的产生。在本章中, 我们介绍了高次谐波实验及其“三步模型”的半经典物理解释。其次我们讨论了高次谐波的相位匹配原理。最后我们研究了基于氩气-氢气靶阵列的准相位匹配机制。

参考文献

- [1] Wildenauer J. Generation of the ninth, eleventh, and fifteenth harmonics of iodine laser radiation [J]. *Journal of applied physics*. 1987, 62 (1): 41–48.
- [2] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization [J]. *Physical Review Letters*. 1993, 71 (13): 1994.

-
-
- [3] Träger F. Springer handbook of lasers and optics [M]. Springer-Verlag New York, 2007.
- [4] Apolonski A, Poppe A, Tempea G, et al. Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses [J]. *Physical Review Letters*. 2000, 85 (4): 740.
- [5] Jones D J, Diddams S A, Ranka J K, et al. Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis [J]. *Science*. 2000, 288 (5466): 635–639.
- [6] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W. Optical frequency metrology [J]. *Nature*. 2002, 416 (6877): 233–237.
- [7] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses [J]. *Optics Communications*. 1985, 55 (6): 447–449.
- [8] Tournois P. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems [J]. *Optics communications*. 1997, 140 (4): 245–249.
- [9] Verluise F, Laude V, Cheng Z, et al. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping [J]. *Optics Letters*. 2000, 25 (8): 575–577.
- [10] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime [J]. *Physical Review Letters*. 1992, 68 (24): 3535.
- [11] Corkum P, Burnett N, Brunel F. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit [J]. *Physical review letters*. 1989, 62: 1259–1262.
- [12] Kuchiev M Y. Atomic antenna [J]. *JETP Lett*. 1987, 45 (7): 404–406.
- [13] Brunel F. Harmonic generation due to plasma effects in a gas undergoing multiphoton ionization in the high-intensity limit [J]. *JOSA B*. 1990, 7 (4): 521–526.
- [14] Brunel F. Not-so-resonant, resonant absorption [J]. *Physical Review Letters*. 1987, 59 (1): 52.
- [15] Keldysh L. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave [J]. *Sov. Phys. JETP*. 1965, 20 (5): 1307–1314.
- [16] Chang Z. Fundamentals of attosecond optics [M]. CRC Press Boca Raton, 2011.
- [17] Perelomov A, Popov V, Terentev M. Ionization of atoms in an alternating electric field [J]. *Sov. Phys. JETP*. 1966, 23 (5): 924–934.

-
-
- [18] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in alternating electromagnetic field [J]. *Sov. Phys. JETP*. 1986, 64 (06): 1191–1196.
- [19] Tong X-M, Chu S-I. Generation of circularly polarized multiple high-order harmonic emission from two-color crossed laser beams [J]. *Physical Review A*. 1998, 58 (4): R2656.
- [20] Shvetsov-Shilovski N, Goreslavski S, Popruzhenko S, et al. Ellipticity effects and the contributions of long orbits in nonsequential double ionization of atoms [J]. *Physical Review A*. 2008, 77 (6): 063405.
- [21] Altucci C, Tosa V, Velotta R. Beyond the single-atom response in isolated attosecond-pulse generation [J]. *Physical Review A*. 2007, 75 (6): 061401.
- [22] Sansone G. Quantum path analysis of isolated attosecond pulse generation by polarization gating [J]. *Physical Review A*. 2009, 79 (5): 053410.
- [23] Möller M, Cheng Y, Khan S D, et al. Dependence of high-order-harmonic-generation yield on driving-laser ellipticity [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (1): 011401.
- [24] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Physical Review A*. 1994, 49 (3): 2117.
- [25] Popmintchev T, Chen M-C, Arpin P, et al. The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation [J]. *Nature Photonics*. 2010, 4 (12): 822–832.
- [26] Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K. Generation of 10- μ J coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics [J]. *Optics letters*. 2002, 27 (21): 1920–1922.
- [27] Christov I, Kapteyn H, Murnane M. Quasi-phase matching of high-harmonics and attosecond pulses in modulated waveguides [J]. *Optics Express*. 2000, 7 (11): 362–367.
- [28] Paul A, Bartels R, Tobey R, et al. Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light [J]. *Nature*. 2003, 421 (6918): 51–54.
- [29] Shkolnikov P, Lago A, Kaplan A. Optimal quasi-phase-matching for high-order harmonic generation in gases and plasma [J]. *Physical Review-Section A-Atomic Molecular and Optical Physics*. 1994, 50 (6): R4461.
- [30] Auguste T, Carre B, Salieres P. Quasi-phase-matching of high-order harmonics using a modulated atomic density [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (1): 011802.

-
-
- [31] Voronov S, Kohl I, Madsen J, et al. Control of laser high-harmonic generation with counterpropagating light [J]. *Physical Review Letters*. 2001, 87 (13): 133902.
- [32] Peatross J, Voronov S, Prokopovich I. Selective zoning of high harmonic emission using counter-propagating light [J]. *Optics express*. 1997, 1 (5): 114–125.
- [33] Zhang X, Lytle A L, Popmintchev T, et al. Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light [J]. *Nature Physics*. 2007, 3 (4): 270–275.
- [34] Pirri A, Corsi C, Bellini M. Enhancing the yield of high-order harmonics with an array of gas jets [J]. *Physical Review A*. 2008, 78 (1): 011801.
- [35] Seres J, Yakovlev V, Seres E, et al. Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources [J]. *Nature Physics*. 2007, 3 (12): 878–883.
- [36] Willner A, Tavella F, Yeung M, et al. Efficient control of quantum paths via dual-gas high harmonic generation [J]. *New Journal of Physics*. 2011, 13 (11): 113001.
- [37] Willner A, Tavella F, Yeung M, et al. Coherent control of high harmonic generation via dual-gas multijet arrays [J]. *Physical Review Letters*. 2011, 107 (17): 175002.
- [38] Wells E, DeWitt M J, Jones R. Comparison of intense-field ionization of diatomic molecules and rare-gas atoms [J]. *Physical Review A*. 2002, 66 (1): 013409.
- [39] Larochelle S, Talebpour A, Chin S-L. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti: Sapphire laser field [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 1998, 31 (6): 1201.
- [40] http://henke.lbl.gov/optical_constants/gastrn2.html.
- [41] Heslar J, Telnov D, Chu S-I. High-order-harmonic generation in homonuclear and heteronuclear diatomic molecules: Exploration of multiple orbital contributions [J]. *Physical Review A*. 2011, 83 (4): 043414.
- [42] Wang X, Chini M, Zhang Q, et al. Mechanism of quasi-phase-matching in a dual-gas multijet array [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (2): 021802.
- [43] Chu S-I. Recent development of self-interaction-free time-dependent density-functional theory for nonperturbative treatment of atomic and molecular multi-photon processes in intense laser fields [J]. *The Journal of chemical physics*. 2005, 123: 062207.
- [44] Carrera J J, Chu S-I, Tong X. Very-high-order harmonic generation from Ar atoms and Ar⁺ ions in superintense pulsed laser fields: An ab initio self-interaction-free time-dependent density-functional approach [J]. *Physical Review A*. 2005, 71 (6): 063813.

- [45] Telnov D A, Chu S-I. Effects of multiple electronic shells on strong-field multiphoton ionization and high-order harmonic generation of diatomic molecules with arbitrary orientation: An all-electron time-dependent density-functional approach [J]. *Physical Review A*. 2009, 80 (4): 043412.
- [46] Lyngå C, L'Huillier A, Wahlström C. High-order harmonic generation in molecular gases [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 1996, 29 (14): 3293.

第三章 单个阿秒脉冲的产生与测量

根据“三步模型”，电子与离子复合并辐射出高能光子的过程在每半个周期都会发生一次。这表明高次谐波很可能是以激光半周期重复的阿秒脉冲串。这种猜测也与高次谐波之间间隔 2 倍基频光子能量的分离谱特性十分吻合。后来，人们证实相邻两个半周期的短（长）路径电子辐射的谐波是相干的^[1]，并在实验上测到长度为 250 as^[2] 子脉冲组成的阿秒脉冲串。尽管如此，整个阿秒脉冲串的长度仍然与飞秒基频光相当。要想做电子动力学过程的超快时间分辨，就必须从阿秒脉冲串中选出单个阿秒脉冲，这就要用到我们在第一章介绍的各种选通门技术。本章将重点讨论偏振选通门与双光学选通门技术。此外，本章还介绍了常用的阿秒脉冲测量技术及阿秒脉冲的色散补偿。

3.1 单个阿秒脉冲的产生

高次谐波的产量对激光的偏振状态十分敏感。0.2 的椭偏率将会导致高次谐波产量减小一个数量级（图2.9）。基于这点，Corkum 等人^[3] 提出用一种椭偏率随时间变化的激光场去产生高次谐波。其中激光场处于线性偏振的时间可以控制在半个周期之内，这样就只会产生一个阿秒脉冲。这种方法被称为偏振选通门（PG）。

3.1.1 偏振选通门

偏振状态随时间变化的选通门电场可以由两个反向旋转的圆偏光以一定的相对延迟叠加而得到^[4]。数学上，一个 z 向传播的左旋和右旋光可以分别表示为：

$$\vec{E}_l(t) = E_0 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-T_d/2}{\tau} \right)} \left[\cos(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \vec{i} + \sin(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \vec{j} \right] \quad (3.1)$$

$$\vec{E}_r(t) = E_0 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t+T_d/2}{\tau} \right)} \left[\cos(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \vec{i} - \sin(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \vec{j} \right] \quad (3.2)$$

其中 E_0 是电场峰值强度， T_d 是两个脉冲的相对延迟， τ 是脉冲的半高宽， ω_0 和 φ_{CE} 分别为中心圆频率和载波包络相位。图3.1 (a) 是两个中心波长为 800 nm，脉冲长度 10 fs，载波包络相位为 0 的左旋和右旋圆偏光。它们合成的总电场 $\vec{E} = \vec{E}_l + \vec{E}_r$ ，通常把它分解为 x 、 y 方向上的两个正交分量 E_x 、 E_y ：

$$E_x(t) = E_0 \left[e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-T_d/2}{\tau} \right)} + e^{-2\ln 2 \left(\frac{t+T_d/2}{\tau} \right)} \right] \cos(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \quad (3.3)$$

$$E_y(t) = E_0 \left[e^{-2\ln 2 \left(\frac{t-T_d/2}{\tau} \right)} - e^{-2\ln 2 \left(\frac{t+T_d/2}{\tau} \right)} \right] \sin(\omega_0 t + \varphi_{CE}) \quad (3.4)$$

若图3.1 (a) 中两束反向圆偏光的相对延迟为 $T_d = 3$ fs, 则它们的总电场如图3.1

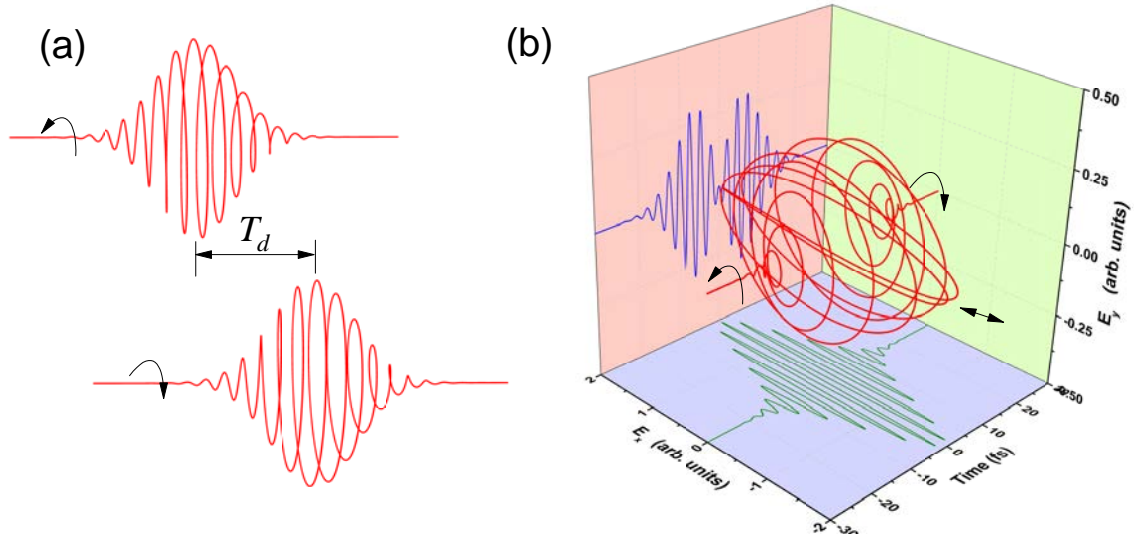


图 3.1 椭圆率随时间变化的电场: (a) 时间上分开的左旋和右旋圆偏光及 (b) 它们的合成电场

(b) 中的三维曲线所示。该脉冲在前沿处是左旋椭偏的, 后沿处是右旋椭偏的, 而在中间很窄的区域是线性偏振的, 这一线偏区域称为选通门。电场的 x , y 方向的分量分别投影在3.1 (b) 的底面和侧面上。可以看出 x 分量在中间线性偏振区域有着较大的光强, 通常把它称为驱动电场 (Driving Field); 而 y 分量电场较弱, 而且在线性区域为零, 它的作用是控制电子与离子的复合, 因而称为选通电场 (Gating Field)。取选通电场和驱动电场强度的比值便能得到总电场的椭圆率为:

$$\begin{aligned} \xi(t) &= \frac{\left| e^{-2\ln 2\left(\frac{t-T_d/2}{\tau}\right)} - e^{-2\ln 2\left(\frac{t+T_d/2}{\tau}\right)} \right|}{e^{-2\ln 2\left(\frac{t-T_d/2}{\tau}\right)} + e^{-2\ln 2\left(\frac{t+T_d/2}{\tau}\right)}} \\ &= \frac{\left| 1 - e^{-2\ln 2\frac{T_d}{\tau^2}} \right|}{1 + e^{-2\ln 2\frac{T_d}{\tau^2}}} \end{aligned} \quad (3.5)$$

为了产生单个阿秒脉冲, 我们需要把选通门的宽度控制在半个周期之内。这里我们需要引入一个偏振阈值 ξ_{th} , 用以区别线偏光和椭偏光 (从产生高次谐波的角度来看), 也即线偏光的椭圆率 $\xi \leq \xi_{th}$, 而对椭偏光有 $\xi > \xi_{th}$ 。因此, 选通门的宽度就是电场椭圆率小于偏振阈值的时间长度。由式 (3.5) 可以解出选通门的宽度为^[5]:

$$\tau_G = \frac{\tau^2 \xi_{th}}{T_d \ln 2} \quad (3.6)$$

上式表明，选通门的宽度是由飞秒脉冲长度和脉冲相对延时共同决定的。对于给定长度的飞秒激光脉冲，要使选通门不大于半个激光周期，则两个反向圆偏脉冲的延时必须满足：

$$T_d \geq \frac{\tau^2 \xi_{th}}{\tau_c \ln 2} = \frac{2\tau^2 \xi_{th}}{T_0 \ln 2} \quad (3.7)$$

偏振选通门所需要的激光场虽然十分复杂，但却可以在实验上通过如图3.2所示的共线的光学器件从线性偏振光来进行构造。首先激光光束垂直入射到一个光轴与激光偏振方向成 45° 角的石英片。由于石英片快慢轴的折射率存在差异，沿着快轴和慢轴方向的激光分量将在时间上分开，从而得到具有一定延时的两个偏振互相垂直的激光脉冲。二者之间的延时是取决于石英片厚度。然后这两个线偏的脉冲分别被一个零阶 $1/4$ 波片转化成左旋和右旋的圆偏光。这样便能合成一个偏振选通门所需的脉冲。零阶 $1/4$ 波片不会造成反向圆偏光延时的改变，所以偏振门的宽度可完全由第一个石英片的厚度来决定。

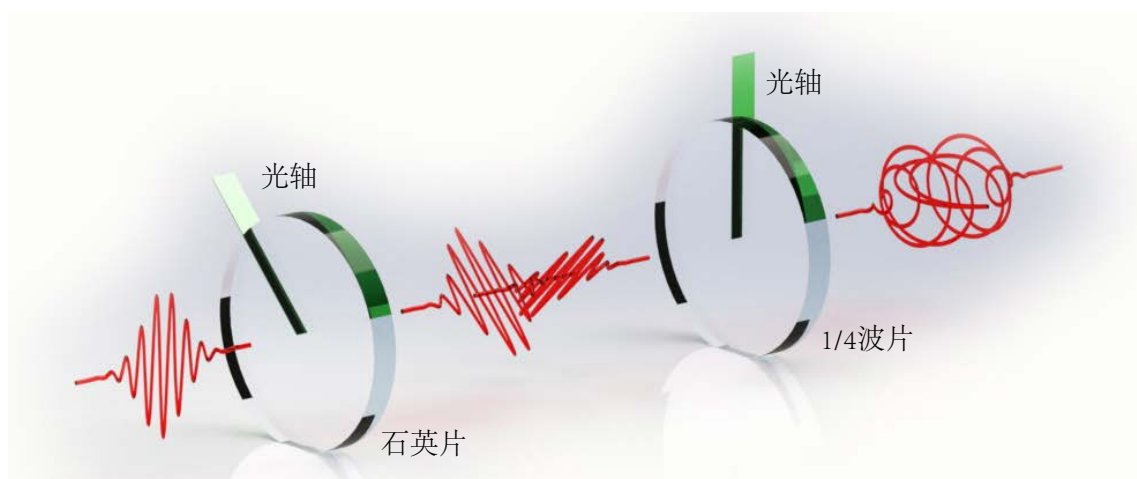


图 3.2 偏振选通门电场的构造

偏振选通门技术已被多个研究小组成功用于产生单个阿秒脉冲或者支持单个阿秒脉冲的连续谱。按照式 (3.7)，似乎任意长度的初始激光脉冲都可以通过一定的延迟合成选通门小于 $\frac{T_0}{2}$ 的偏振门电场。但是当脉冲长度增加时，所需的延时会以平方关系增加，这时在偏振门之内的驱动电场将十分微弱，会极大降低高次谐波的产生效率，甚至不足以产生高次谐波。另一方面，在选通门之前的前沿电场会相应增强，这部分电场将通过电离消耗掉中性原子，从而抑制谐波的产量。所以，偏振选通门一般只适用于较短的 (<10 fs) 飞秒激光脉冲。此外，阿秒脉冲串虽然以 $\frac{T_0}{2}$ 为周期重复，但每个子脉冲具有一定的时间宽度，半个周期的选通门仍然有可能会选出两个脉冲^[6]。要想得到单个阿秒脉冲，就必须精确控制选通门

内的电场，也就是精确控制载波包络相位。所以，偏振门技术虽然能产生单个阿秒脉冲，但仍然对飞秒激光脉冲本身有着极高的要求。

3.1.2 双光学选通门

为了使单个阿秒的产生更加容易，Chang 等人对偏振门技术进行改进，提出了双光学选通 (DOG) 的方案^[7, 8]。其主要思想在偏振门中引入基频光的倍频场，破坏基频场的对称性，从而使阿秒脉冲串的间隔时间增加到一个光学周期。这样，选通门也可以相就地增加到一个光学周期，减小了反向圆偏光之间的延时。这种方案允许使用更长的飞秒脉冲来产生单个阿秒脉冲。

3.1.2.1 双光学选通的基本原理

利用双色场选通产生单个阿秒的技术早在 2006 就被人提出^[9, 10]，它的原理在于增大相邻阿秒脉冲之间的时间间隔。高次谐波的半周期重复特性起源于激光电场一个周期内正负电场的对称性。若在基频场中加入一个相位和强度合适的倍频场，则能增强基频场在一个方向的电场而减弱相反方向的电场。如图 3.3 所示，其中 (a) 图中的实线是一个 800 nm, 10 fs 的飞秒脉冲，图 (b) 中的实线是加入强度为基频场强度 10% 的倍频场之后的电场，二者的相位差为零，可以看出倍频场削弱了负向的电场而增加了正向电场。隧穿电离对电场的依赖呈极高的非线性特性，因而电离概率会随这种激光场电场的轻微调制而激烈变化。设基频场光强为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，对于氖气，利用 ADK 模型求得的电离概率如 (a)、(b) 图中的灰色填充曲线所示。(a) 图中每隔半个周期当电场到达峰值附近时便会发生隧穿电离。而在图 (b) 加入倍频场的情况下，负电场的峰值强度太弱，并不足以使电子隧穿出来，因而只会在正电场的峰值附近才有电子隧穿，于是隧穿电离发生的时间由半周期变成了一个周期。

高次谐波辐射是隧穿电离的后续过程，也自然会以一个光学周期的频率重复。由“三步模型”，只有在峰值之后隧穿电子才会与离子复合产生高次谐波，并且可以由隧穿时刻电场的切线找出谐波发射的时间。图 3.3 (c) 和 (d) 分别给出了图 (a)、(b) 中的电场产生的阿秒脉冲串的示意图。可以看出倍频场的加入使相邻阿秒子脉冲的间隔增大了一倍。若此时加入偏振门，则偏振门宽度可以取为 $\tau_G = T_0$ (图中渐变色填充表示电场椭圆偏率)。由式 (3.7)，此时两个圆偏脉冲之间的相对延时可以减小为 PG 情况的二分之一，这就允许我们使用更长的飞秒脉冲来产生单个阿秒脉冲。这便是双光学选通的基本原理。

3.1.2.2 广义双光学选通门

在讨论偏振选通门时，我们提到驱动电场在选通门之前的前沿电场对气体的电离是限制脉冲长度的关键因素。这对双光学选通仍然是个限制，双光学选通

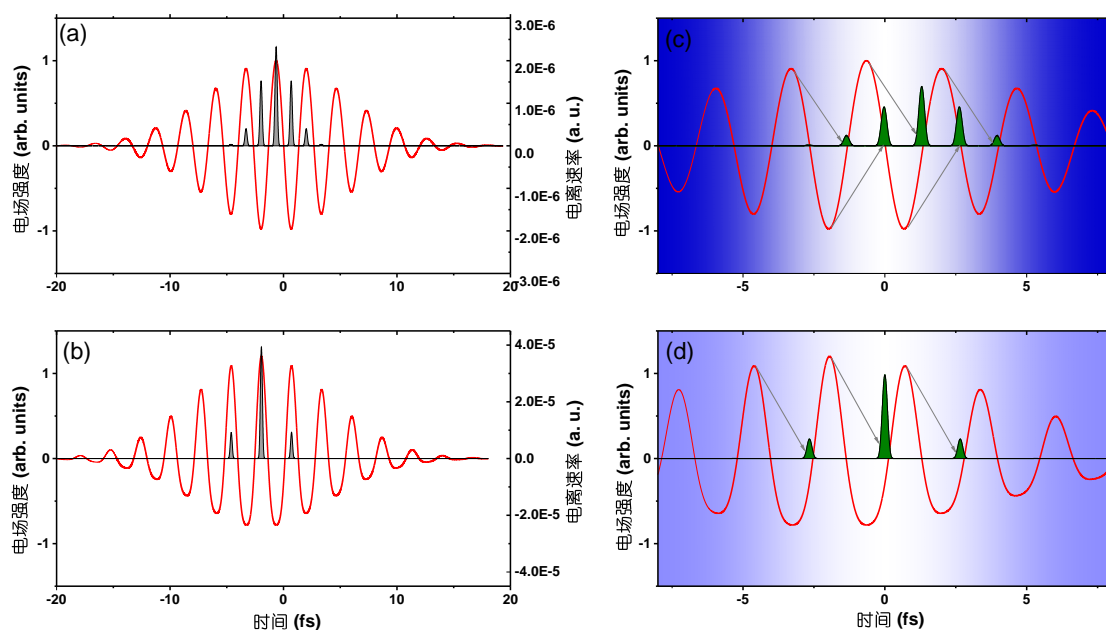


图 3.3 双光学选通基本原理

可用的最长脉冲长度大约为 15 fs，这与一般飞秒激光器的放大级输出脉冲长度仍有较大差距。为了进一步放宽单个阿秒脉冲的产生对于基频飞秒脉冲的要求，Feng 等人对双光学选通门进行了改进^[11]，提出利用玻璃片反射掉一部分驱动电场，而保持选通电场不变，实现上可以通过把玻璃片设置成选通电场的布儒斯特角 (Brewstel Angle) 来实现。这种方法被称为广义双光学选通 (GDOG)。这样做的好处有两个：第一，减小驱动场强度可以减小前沿脉冲对气体的电离；第二，由式 (3.5)，驱动电场的减小可以增大合成电场的椭偏率，因而达到相同的阈值 ξ_{th} ，只需要较小的脉冲延时，这可以通过下面的分析看出。

假设驱动电场通过玻璃片的衰减变为原来的 ε ($\varepsilon < 1$) 倍，相当于在式 (3.3) 的右端乘于 ε 因子，此时偏振门的宽度可以变为：

$$\tau_G = \frac{\varepsilon \tau^2 \xi_{th}}{T_d \ln 2} \quad (3.8)$$

因而脉冲的延迟为：

$$T_d \geq \frac{\varepsilon \tau^2 \xi_{th}}{\tau_c \ln 2} = \frac{\varepsilon \tau^2 \xi_{th}}{T_0 \ln 2} \quad (3.9)$$

上式用到了 $\tau_c = T_0$ ，这是双光学选通所要求选通门宽度。对于双光学选通， $\varepsilon = 1$ ，对比式 (3.7) 可以发现延时减为偏振选通时的一半；对于改进的双光学选通，若取 $\varepsilon = 0.5$ ，脉冲延时减小为偏振选通时的 $\frac{1}{4}$ ，这将允许更长的飞秒脉冲被用于产生单个阿秒脉冲。为了定量比较三种方法所能使用的飞秒激光脉冲长度，我们用 ADK 模型算出了它们的电场对气体的电离概率，如图 3.4 所示。计算中假设参与

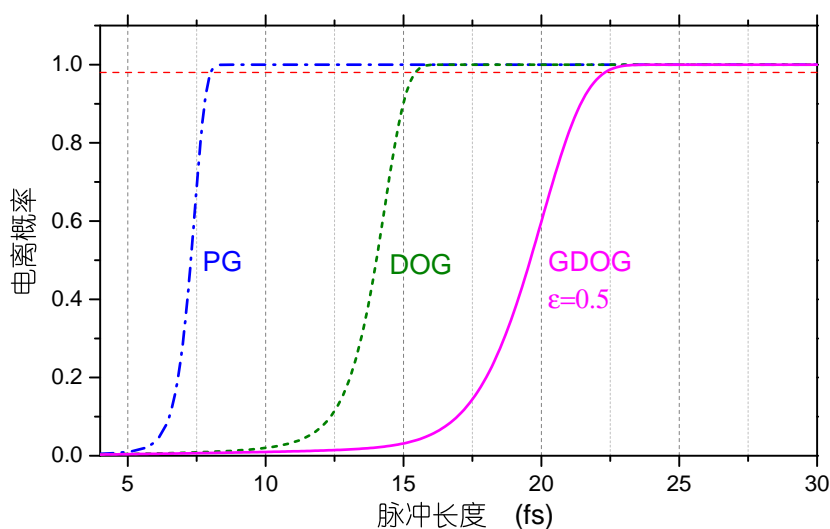


图 3.4 三种选通方案对气体电离的比较

作用的气体为氩气，选通门中心处驱动电场的光强为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。对于给定脉冲长度的飞秒激光，按照式 (3.7) 和式 (3.9) 为 PG、DOG 和 GDOG 方案设定脉冲延时。一般认为高次谐波产生的饱和电离强度为 98%，如图中横向虚线所示。结果显示，对于偏振门方案，8 fs 的脉冲便足以让气体的电离达到饱和；而对于 DOG，可采用的脉冲能延长至 16 飞秒；而 $\varepsilon = 0.5$ 的 GDOG 方案甚至允许用 22 飞秒的激光脉冲来直接产生单个阿秒脉冲。这在实验上有着极大的意义，因为这种长度的飞秒脉冲可以由大多数商业飞秒激光器的放大级直接输出。

通过把选通门宽度设为一个光学周期，GDOG 技术能极大放宽对激光长度的要求。但一个光学周期的选通门宽度是产生单个阿秒脉冲的最低要求，要想确保只有一个阿秒脉冲被产生，还必须把选通门放在基频场的合适位置，即控制基频光的载波包络相位^[8]。若进一步将广义双光学选通门的宽度减小至半个光学周期，则不论载波包络相位如何，都不会得到多于一个的阿秒脉冲^[12]。此时载波包络相位只会影响单个阿秒脉冲的强度。因此，利用 GDOG，人们可以用 20 fs 以上载波包络相位不锁定的飞秒脉冲来产生单个阿秒脉冲。

3.1.2.3 双光学选通电场的合成

GDOG 可用如图 3.2 所示的共线的实验装置来实现^[11, 13]。它在偏振门装置 (图 3.3) 的基础上加入了布儒斯特窗口片和 BBO，分别用来引入 ε 和双色场。虽然整个光路与偏振门的光路十分相似，但 GDOG 对于各个光学器件有着特别的要求。首先，第一个石英片的作用仍然是用来引入脉冲延迟的。但在 GDOG 中该石英片必须是一个全波片，也就是只能引入激光周期整数倍速的延时。否则，合成电场线性偏振部分的偏振将不会和入射光及倍频场的偏振一致，进而引起驱动电场和选通电场的畸变。因此，石英片厚度不能取按式 (3.9) 得到的任意计算值。

其次，第二个 1/4 波片和 BBO 的厚度是相互依赖的。这是因为用于倍频的 BBO 晶体也会不可避免地会在驱动电场和选通电场之间引入时间延迟。但注意到石英片是正单轴晶体而 BBO 是负单轴晶体，它们引入的延迟可以相互补偿，所以通常选取合适的厚度使这二者合起来相当于一块零阶 1/4 波片。对于中心波长为 800 nm 的激光脉冲，在实验中，可取第二个波片为 440 μm 厚的石英片，BBO 以 29.2 度（相位匹配角）切割且厚度为 141 μm 。最后，由于倍频光和基频光在空气中有着不同的色散，在实验中应把 BBO 放置于真空腔体中。

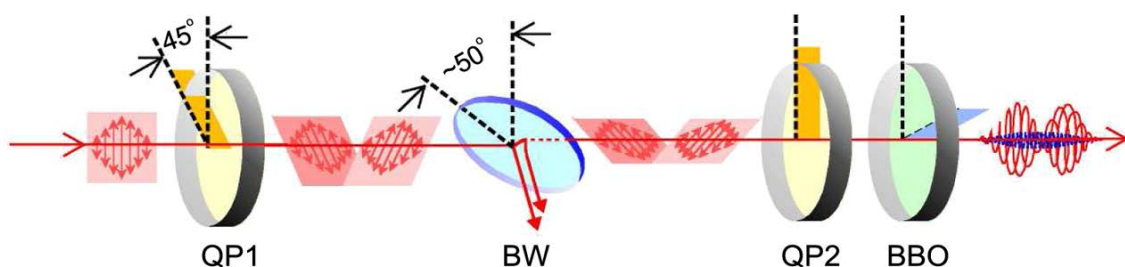


图 3.5 GDOG 光路图^[13]

3.1.3 各种方案的比较

以上的两种方案都是致力于放宽产生单个阿秒脉冲对基频光脉冲的限制条件，虽然要求较低，但方法相对复杂。在第一章中，我们还简单介绍了单个阿秒产生的振幅选通门和电离选通门，它们都要求使用极短的飞秒基频场，直接就能得到由几个能量范围不同的子脉冲组成的阿秒脉冲串，最后用一个滤波片就能得到单个阿秒脉冲。这些方法的最明显区别就是对于飞秒基频激光场的要求不同，但现在利用空芯光纤压缩技术，获得周期级载波包络相位稳定的飞秒脉冲并不困难。其实除了产生方法的不同，这些方案产生的单个阿秒脉冲本身也有着很大的差别。

由于要利用滤波片来滤掉其他子脉冲，振幅选通门和电离选通门只能得到截止能量附近的光谱分量，因此这两种方法产生的光子能量一般较高。而偏振选通门由于选通门的宽度为只有半个激光周期，得到的一般只是平台区的光子。这有两方面的原因：一方面，从图2.10中可以看出，拥有截止能量的光子要花大约 4 rad 的时间才能回到母原子，所以在偏振门宽度之内，截止区的光子都不会产生。另一方面，低能光子产量对偏振的依赖关系较弱^[14]，也即低能光子的 ξ_{th} 取值更大，比如 9 阶谐波的椭偏率阈值约为 $\xi_{th} = 0.4$ 。由式 (3.7) 可知，这种低能的光子所要求的脉冲延时是平台区的两倍，这对于较长的脉冲是不能实现的。而双光学选通门却能产生从低能区到高能区的所有光子，这是因为它的选通门宽度可以设置为一个周期，允许各种能量的电子返回母原子。此外，GDOG 方案中可

以通过减小 ε 补偿掉 ξ_{th} 的增大, 比如 $\varepsilon = 1$, $\xi_{th} = 0.2$ 和 $\varepsilon = 0.5$, $\xi_{th} = 0.4$ 对基频脉冲的要求是一样的。因而双光学选通门也可以对低能光子进行选通。产生低能光子对于我们后面几章的阿秒瞬态吸收光谱实验十分重要, 因为大部分原子的束缚态能量和电离能都在 10–25 eV 之间, 我们需要这个能量区间的光子来对原子进行泵浦和测量。

3.2 单个阿秒脉冲的测量

在实验中, 我们一般都是对高次谐波及阿秒脉冲进行光谱测量。通过各种选通技术获得连续光谱是产生单个阿秒的必要条件, 但要真正确定产生的是否为单个阿秒脉冲以及阿秒脉冲长度就必须测得其电场在时间上的分布。由于光谱范围及脉冲能量的巨大差异, 很多适用于飞秒脉冲测量的技术, 例如自相关、FROG^[15–17] 和 SPIDER^[18] 等, 对阿秒脉冲已不在有效。目前测量阿秒脉冲的主流方法是基于频率分辨光学门的阿秒脉冲完全重建技术, 或缩写为 FROG–CRAB。这种方法通过测量阿秒脉冲产生的光电子能谱在红外激光场的改变来反演阿秒脉冲的时域分布。本节将讨论 FROG–CRAB 的基本原理及其缺陷, 并在此基础上介绍了更加普适的 PROOF 方法。

3.2.1 FROG-CRAB

FROG–CRAB 技术是在阿秒条纹相机的基础上发展而来的。当一个阿秒脉冲 $\vec{E}_x(t)$ 与电离能 I_p 小于其光子能量的原子相互作用时, 会由单光子电离过程产生一束自由电子。而且这束光电子的能谱结构与阿秒脉冲的光子能谱结构一致, 只是能量减小了 I_p 。但若同时有一束适当强度的 ($\sim 10^{11}$ – 10^{13} W/cm²) 红外激光场 $\vec{E}_L(t) = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t}$ 存在, 自由光电子将受红外激光驱动而使自身能量发生改变。最终光电子的能量分布 $S(\vec{v})$ 将是阿秒脉冲和红外激光场的相对延时 τ_d 的函数。设红外激光场和阿秒电场的偏振方向相同, 则光电子的能量分布随 τ_d 的变化可表示为^[19, 20]:

$$S(\nu, \tau_d) = |b(\nu, \tau_d)|^2 \quad (3.10)$$

$$b(\nu, \tau_d) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\varphi(\nu, t)} d_{\vec{p}} E_x(t - \tau_d) e^{-i(W + I_p)t} \quad (3.11)$$

其中 $W = \frac{v^2}{2}$ 是电子的动能; $\vec{p} = \vec{v} + \vec{A}_L(t)$ 是自由电子的在激光场中的瞬时动量; $d_{\vec{p}}$ 是电子从原子基态到 \vec{p} 态的偶极跃迁矩阵元; $\varphi(\nu, t)$ 为:

$$\varphi(\nu, t) = - \int_t^{+\infty} dt' \left[\nu A(t') \cos(\theta) + \frac{A^2(t')}{2} \right] \quad (3.12)$$

上式是从光电子诞生时刻到激光脉冲结束时刻的积分，其中 θ 是测量方向与激光电场的夹角。 $\varphi(\nu, t)$ 是式 (3.11) 中唯一含红外激光场的项，这说明红外激光对自由光电子的作用中只是引入了一个随时间变化的相位 $\varphi(\nu, t)$ 。

$S(\vec{\nu}, \tau_d)$ 是实验上可观测的量。它是光子能量 ν 和相对延时 τ_d 的二维函数，习惯把它称为谱图。在飞秒激光测量的 FROG 方法也存在如下的谱图^[21]：

$$S_{FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt P(t - \tau) G(t) e^{-i\omega t} \right|^2 \quad (3.13)$$

上式中 $P(t)$ 是待测飞秒脉冲， $G(t)$ 是另一束参考脉冲，通常是待测脉冲自己，也可以任何未知的脉冲^[22]。表面上看， $S_{FROG}(\omega, \tau)$ 是丢失了相位信息的光谱强度，求解 $P(t)$ 和 $G(t)$ 相当根据光谱强度重建相位。这对于一维问题是不可解的，因为光谱强度和自身的相位没有必然联系，但对于二维及更高维问题，相位重建却是唯一解的^[23-25]。所以在原理上，一幅给定的谱图 $S_{FROG}(\omega, \tau)$ 对应着唯一的待测脉冲 $P(t)$ 和参考脉冲 $G(t)$ 。这样的相位重建问题可以通过 PCGPA 算法^[26] 迭代求解。对比式 (3.13) 和式 (3.10)，我们可以把 $E_x(t)$ 看作待测脉冲，把 $\varphi(\nu, t)$ 看作参考脉冲。只是 $\varphi(\nu, t)$ 同时是能量和时间的函数，无法直接套用 FROG 的 PCGPA 算法。但是当阿秒脉冲的带宽相对于其中心频率很小时，可以近似认为 $\varphi(\nu, t) = \varphi(\nu_0, t)$ ，同时偶极跃迁矩阵元可近似为 $d_{\vec{p}} = d_{\vec{p}_0}$ ，不妨看作常数。 $\nu_0 = \sqrt{2W_0}$ 为光电子中心动量，这种近似于是称为中心动量近似。这样式 (3.12) 可以写为：

$$\varphi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' \left[\nu_0 A(t') \cos(\theta) + \frac{A^2(t')}{2} \right] \quad (3.14)$$

在中心动量近似下， $\varphi(t)$ 只是时间的函数。这样，在数学形式上，式 (3.10) 和 FROG 谱图完全一致，可以应用相同的反演算法来重建阿秒脉冲的电场。

图3.6 (a) 是模拟计算的一幅 FROG-CRAB 谱图。计算中用一个中心能量为 100 eV、脉冲长度为 200 as 的傅里叶变换极限的阿秒脉冲 (图 (c) 为其光谱) 去电离氦原子，所产生的光电子谱被一束中心波长为 800 nm、脉冲长度为 10 fs、光强为 1×10^{13} W/cm² 的红外电场 (如图 (b)) 调制。可以看出在红外激光与阿秒脉冲在时间上分开很大时，光电子受到的调制很小，其光谱与阿秒光子谱只差一个氦气的电离能 ($I_p = 24.6$ eV)。而在二者重合时，光电子能量的改变与其自身带宽相当。对比图 (a) 和图 (b)，可以看出光电子能谱的调制能直接反映出红外电场的脉冲长度。在图 (a) 所示的谱图中，光电子谱带宽 (~ 30 eV) 小于其中心能量 75 eV，此时中心动量近似成立，所以可以用 PCGPA 算法来重建阿秒电场。但若阿秒脉冲短至 50 as 以下，调制后的光电子谱带宽将达到 80 eV 以上，此时中心动量不再成立，所以 FROG-CRAB 对于超宽带的极短阿秒脉冲并不适用。

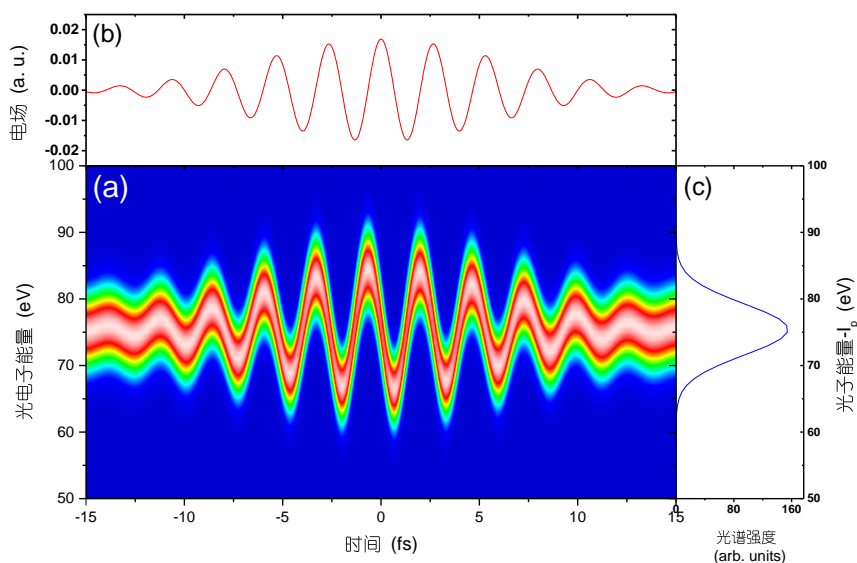


图 3.6 FROG-CRAB 谱图

3.2.2 PROOF

随着阿秒产生技术的发展，人们已能产生支持 20 as 脉冲的超宽带连续谱^[27]，这样的带宽与远远超出了中心动量近似的适用范围。为了测量这样的极短阿秒脉冲，就必须避开中心动量近似。Chini 等人^[28] 提出对式 (3.11) 进行单频滤波，原则上可以重建任意宽度的阿秒脉冲，这种方法被称为基于单频滤波的相位重建技术 (PROOF)。

3.2.2.1 PROOF 的基本原理

待测阿秒脉冲 $E_x(t)$ 可以用其光谱表述为：

$$E_x(t) = \int_{-\infty}^{\infty} U(\omega) e^{i\phi(\omega)} e^{i\omega t} d\omega \quad (3.15)$$

其中 $U(\omega)$ 是光谱分量 ω 的振幅强度，可以通过光子谱仪或光电子谱仪直接测量得到。而 $\phi(\omega)$ 是光谱分量的相位，是阿秒脉冲测量的目标。用来对光电子谱进行调制的红外激光电场在慢变包络近似下可表述为：

$$E_L(t) = E_0(t) \cos(\omega_L t) \quad (3.16)$$

其中 ω_L 是红外激光的中心频率。该电场对应的矢势为：

$$A(t) = - \int E_L(t) dt \approx - \frac{E_0(t)}{\omega_L} \sin(\omega_L t) \quad (3.17)$$

把上式代入式 (3.12), 并令 $\theta = 0$ (在平行于激光偏振的方向上探测电子), 可得红外激光场对光电子谱的相位调制为:

$$\begin{aligned}\varphi(v, t) &= -\int_t^{+\infty} \frac{E_0^2(t')}{4\omega_L^2} dt' + \frac{vE_0}{\omega_L^2} \cos(\omega_L t) - \frac{E_0^2}{8\omega_L^3} \sin(2\omega_L t) \\ &\equiv \varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3\end{aligned}\quad (3.18)$$

上式在积分时忽略了 E_0 随时间的变化, 这对于较弱的长脉冲可认为是近似成立的。 $\varphi(t)$ 有三项组成, 其中第一项 φ_1 是个常数, 可以忽略; 第三项 φ_3 跟电场强度的平方成正比, 在弱电场下也可以忽略。进而有:

$$\varphi(v, t) \approx \varphi_2 = \frac{vE_0}{2\omega_L^2} (e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}) \quad (3.19)$$

当 $\frac{vE_0}{\omega_L} \ll \omega_L$ 时, $\varphi(v, t) \ll 1$, 因而有:

$$e^{i\varphi(v, t)} \approx 1 + i\varphi(v, t) \quad (3.20)$$

代入式 (3.11) 可得:

$$\begin{aligned}b(v, t) &= -ie^{-i\omega_v \tau_d} \left[U(\omega_v) e^{i\phi(\omega_v)} + BU(\omega_v - \omega_L) e^{i\phi(\omega_v - \omega_L)} e^{i\omega_L \tau_d} \right. \\ &\quad \left. + BU(\omega_v + \omega_L) e^{i\phi(\omega_v + \omega_L)} e^{-i\omega_L \tau_d} \right]\end{aligned}\quad (3.21)$$

其中 $B = i\frac{vE_0}{2\omega_L^2}$, $\omega_v = \frac{v^2}{2} + I_p$ 是光电子对应的光子能量。则实验中测得的光谱强度分布为 $S(v, \tau_d) = |b(v, t)|^2 = S_0 + S_{\omega_L} + S_{\omega_{2L}}$, 其中 S_0 是不随时间变化的常量, S_{ω_L} 是随着延迟 τ_d 以激光中心频率振荡的分量, 可以从实验测得的谱图 $S(v, \tau_d)$ 中滤波得到, 而 $S_{\omega_{2L}}$ 是以 2 倍激光频率振荡的分量。这里我们只考察单频分量 S_{ω_L} :

$$\begin{aligned}S_{\omega_L} &= 2iBU(\omega_v) \left[U(\omega_v - \omega_L) \sin[\omega_L \tau + \phi(\omega_v - \omega_L) - \phi(\omega_v)] \right. \\ &\quad \left. - U(\omega_v + \omega_L) \sin[\omega_L \tau - \phi(\omega_v + \omega_L) + \phi(\omega_v)] \right]\end{aligned}\quad (3.22)$$

从上式中可以看出 S_{ω_L} 中含有阿秒脉冲的相位信息 $\phi(\omega)$, 足以用来重建阿秒脉冲的电场。式 (3.22) 中含有两个随延时 τ_d 振荡的正弦项, 把它们合并有:

$$S_{\omega_L}(v, \tau) = \frac{vE_0}{\omega_L^2} I(\omega_v) \gamma(\omega_v)^2 \sin[\omega_L \tau_d + \alpha(\omega_v)] \quad (3.23)$$

其中 $I(\omega_v) = |U(\omega_v)|^2$ 为光谱强度, γ 和 α 的表达式分别为:

$$\gamma(\omega_v)^2 = \frac{I(\omega_v - \omega_L)}{I(\omega_v)} + \frac{I(\omega_v + \omega_L)}{I(\omega_v)} - \frac{2\sqrt{I(\omega_v - \omega_L)I(\omega_v + \omega_L)}}{I(\omega_v)} \cos[\phi(\omega_v - \omega_L) + \phi(\omega_v + \omega_L) - 2\phi(\omega_v)] \quad (3.24)$$

$$\tan(\alpha(\omega_v)) = \frac{\sqrt{I(\omega_v + \omega_L)} \sin[\phi(\omega_v) - \phi(\omega_v + \omega_L)] - \sqrt{I(\omega_v - \omega_L)} \sin[\phi(\omega_v - \omega_L) - \phi(\omega_v)]}{\sqrt{I(\omega_v + \omega_L)} \cos[\phi(\omega_v) - \phi(\omega_v + \omega_L)] - \sqrt{I(\omega_v - \omega_L)} \cos[\phi(\omega_v - \omega_L) - \phi(\omega_v)]} \quad (3.25)$$

$\gamma(\omega_v)$ 和 $\alpha(\omega_v)$ 可从实验数据中获得, 可视为已知量。式 (3.24) 和式 (3.25) 实际上是一系列频率间隔为 ω_L 的频谱分量相位之间的递推关系。二者分别包含完整的阿秒脉冲相位信息, 理论上都可以用来重建阿秒脉冲。但在实际中, 由于实验数据存在误差, 这种递推求解会积累误差, 使结果不可信。所以需要同时对各个频率点的相位同时求解, 也就是找到一组相位 $\psi(\omega_v)$, 使得误差函数:

$$R(\psi(\omega_v)) = \sum_{\omega_v} I(\omega_v) \left[\alpha_{meas}(\omega_v) - \alpha(\psi(\omega_v)) \right]^2 \quad (3.26)$$

取最小值。上式 $\alpha_{meas}(\omega_v)$ 是实验测得值, $\alpha(\psi(\omega_v))$ 是由式 (3.25) 得到的计算值。 R 是一个以频谱强度为权重的加权误差函数, 当然也可以去掉权重进行等权加和。求其最小值实际上是一个多变量优化问题, 但由于其形式复杂, 因而无法解析求解。通常可以采用智能优化算法 (比如神经网络算法、遗传算法及模拟退火算法等) 来进行求解。

3.3 单个阿秒脉冲的啁啾补偿

通过各种选通门方法, 人们可以从阿秒脉冲串中选出一个阿秒脉冲。但“三步模型”中辐射出的光子能量与电子-离子的复合时刻相关 (见图2.10), 这就是高次谐波方法产生阿秒脉冲的固有啁啾 $C = \frac{d\phi}{dE}$ 的来源 (固有啁啾和光学中的群延迟色散 GDD 是等价的)。从图2.10中可以看出短路径的啁啾为正, 长路径的啁啾为负。按照“三步模型”, 阿秒脉冲固有啁啾的大小与激光电场强度和波长等相关, 通过解电子运动方程能精确求解。图3.7 (a) 给出了中心波长为 800 nm 强度分别为 0.5×10^{15} (虚线)、 1×10^{15} (实线)、 1.5×10^{15} (点线) 和 2×10^{15} (点划线) W/cm^2 的激光脉冲作用于氖原子过程中电子运动的短路径产生的阿秒脉冲的固有啁啾。可以看出, 阿秒脉冲的固有啁啾在平台区几乎为一不变的常数, 而在低能区和截止区附近变化剧烈。而且光强越高时, 平台区的啁啾越小。一般地, 阿秒脉冲的啁啾与激光光强 I_0 和波长 λ 有如下的近似关系^[29]:

$$C \propto \frac{1}{I_0 \lambda} \quad (3.27)$$

可见, 增大波长和提高光强有利于减小阿秒脉冲在平台区的固有啁啾。

由于固有啁啾的存在, 任何方法选出的单个阿秒脉冲都不是傅里叶变换极限长度的, 需要对啁啾进行补偿才能把它压得更短。Sansone 等人^[30] 用铝膜对偏振

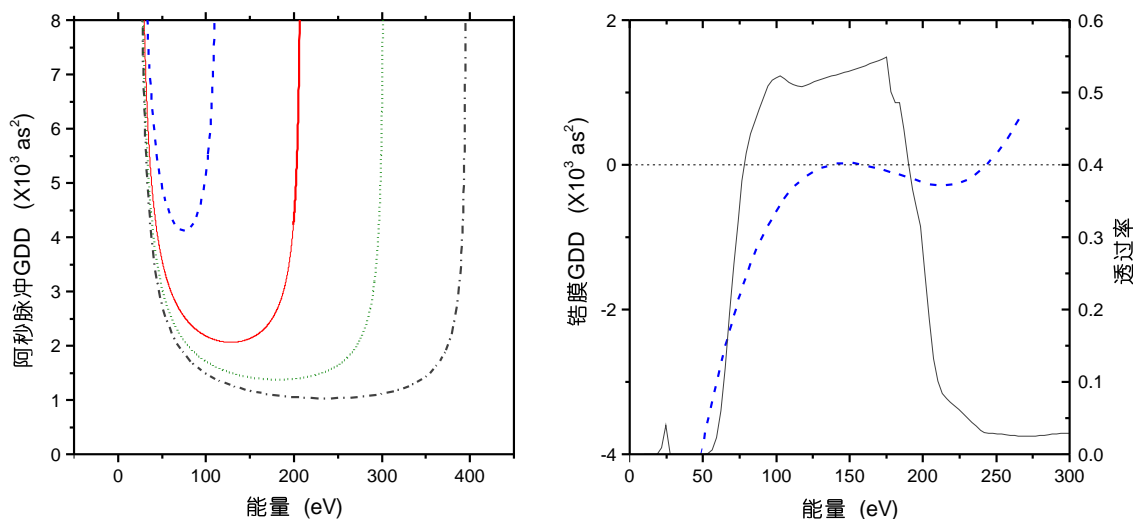


图 3.7 阿秒脉冲固有啁啾的补偿。(a) 中心波长为 800 nm 强度分别为 0.5×10^{15} (虚线)、 1×10^{15} (实线)、 1.5×10^{15} (点线) 和 2×10^{15} (点划线) W/cm^2 的激光脉冲与氦原子作用过程中短路径产生的固有啁啾; (b) 300 nm 铅膜的透过率 (实线, 右轴) 和 GDD (虚线, 左轴) 选通门得到单个阿秒进行补偿, 得到了 130 as 的脉冲。Gouliemakis 等人^[31] 对振幅选通门得到阿秒脉冲用铅膜补偿至 80 as。双光学选通门能得到比偏振选通门及振幅选通门更宽的连续谱, 若能得到很好的啁啾补偿, 会得到更短的飞秒脉冲。本节中, 我们利用双光学选通门技术产生单个阿秒, 并用铅膜进行补偿, 得到了 67 as 的超短脉冲^[32]。这是迄今为止学术界报道的最短阿秒脉冲。

实验中, 我们用脉冲长度为 7fs, 光强为 $1 \times 10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ 的红外飞秒激光与氦原子作用产生单个阿秒脉冲。从图 3.7 (a) 中可以看出, 理论上其光谱范围大概为 22–200 eV。我们选用 300 nm 的铅膜对阿秒脉冲进行补偿。铅膜在阿秒脉冲波段的透过率及群相位延迟^[29, 33] 如图 3.7 (b) 所示。可以看出, 铅膜能滤掉 50 eV 以下固有啁啾很大的低能光谱, 并且在 50–130 eV 的平台区都具有负的 GDD, 能对阿秒固有啁啾进行补偿。但在 130 eV 以上的高能区, 铅膜的 GDD 开始接近于零甚至改变附号, 并且阿秒脉冲的固有啁啾也开始急剧增大, 二者不能互补。为了得到超短阿秒脉冲, 我们需要去掉这部分色散无法得到补偿的光谱。这可以通过调整相位匹配条件来实现。在第二章中, 我们得出高次谐波的截频率为 $\omega_c \approx I_p + 3.2U_p$, 但这仅仅只是单原子的谐波辐射, 气体靶的宏观谐波辐射通常会具有较小的截止频率^[34–36], 这是由不同原子辐射的谐波相干叠加导致的。在实验中, 我们通调节氦气的气压, 破坏高能区的相位匹配, 最终把连续谱的范围限制在 130 eV 以下。

阿秒脉冲在经过相位匹配对光谱进行裁剪和经过铅膜对色散进行补偿之后被聚焦到第二个氦气靶上产生光电子, 另一束强度为 $2.5 \times 10^{11} \text{ W}/\text{cm}^2$ 的飞秒激光以一定的延迟对产生的光电子进行调制。最后光电子被如图 2.15 所示的磁瓶电

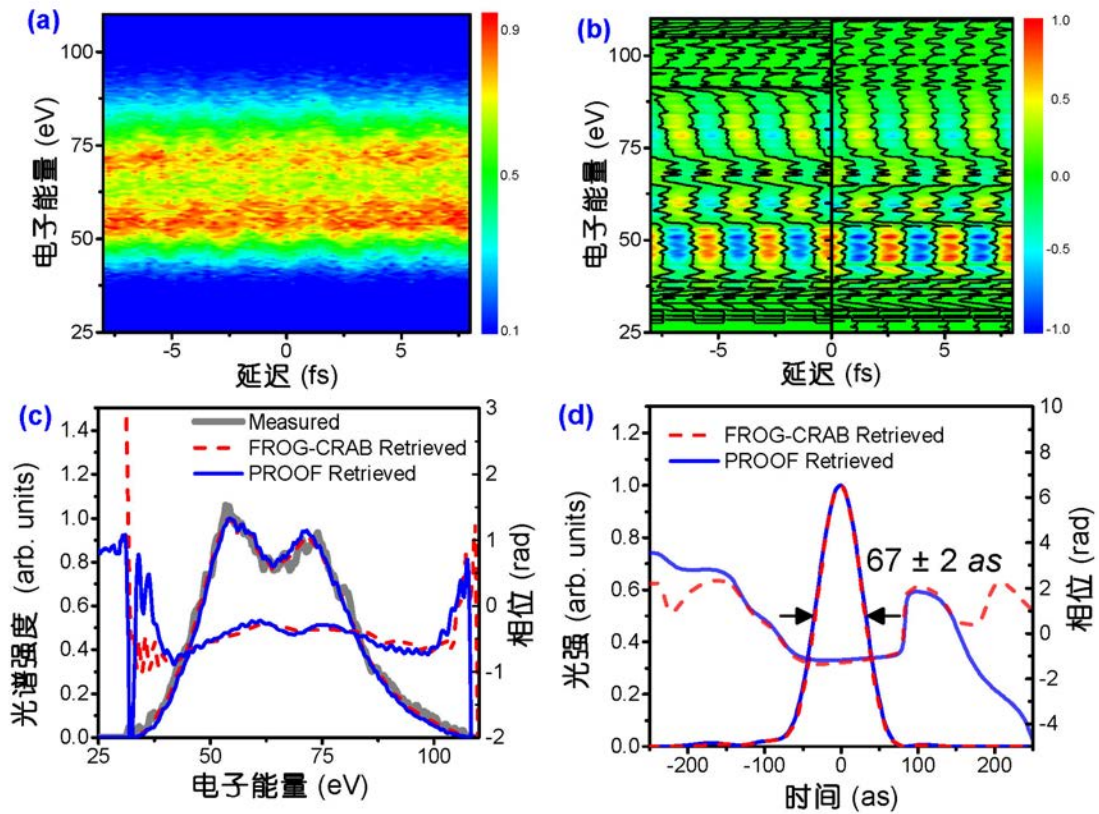


图 3.8 67 as 超短脉冲的测量结果。(a) 测量的 FROG-CRAB 谱图；(b) 用 PROOF 方法单频滤波之后谱图 (左边) 及反演之后的谱图 (右边)；(c) 测量和重建的光电子谱及相位；(d) 重建时域波形及相位

子飞行谱仪测量。测量得到的 FROG-CRAB 谱图如图 3.8 (a) 所示。我们分别用 FROG-CRAB 和 PROOF 方法对之进行了反演。图 (b) 是 PROOF 方法中经过单频滤波之后的谱图 (左边) 及反演之后的谱图 (右边)，二者几乎完全一致，证明了反演的结果的正确性；图 (c) 是测量的光电子谱、反演的光电子谱及它们的相位；图 (d) 是重建的阿秒时域波形。可以看出 FROG-CRAB 和 PROOF 的结果也非常一致。结果表明我们通过相位匹配抑制高能光子和用铪膜补偿阿秒脉冲固有啁啾得到了 67 as 的傅里叶变换极限的单个阿秒脉冲。

由于一定厚度金属膜或其他介质引入的附加色散是一个固定的量，并不能在很大带宽范围内完美补偿阿秒脉冲的固有啁啾，所以这种方法有着自身的局限性。近年来，人们提出了多种其他方法来进一步压缩阿秒脉冲的长度。比如 Poletto 等人^[37, 38] 借鉴传统光学脉冲压缩的思想，提出利用光栅对来补偿阿秒脉冲啁啾；Kohler 等人^[39] 在理论上证实可以通过对红外电场波形进行定制来改变电子的轨迹，从而从根本上消除阿秒脉冲的固有啁啾。随着阿秒科学技术的进一步发展，人们必将大大缩小单个阿秒脉冲的长度，为电子超快动力学测量提供有力的工具。

本章小结

本章我们详细介绍了从阿秒脉冲串中选出单个阿秒脉冲的偏振选通门及双光学选通门技术，并对各种选通门技术的优缺点进行了比较。此外，我们介绍了阿秒脉冲的主流测量方法——基于频率分辨光学门的阿秒脉冲完全重建技术 (FROG-CRAB) 及超宽带阿秒脉冲的测量方法——基于单频滤波的相位重建技术 (PROOF)。最后，我们介绍了如何补偿阿秒脉冲的固有啁啾，进而压缩阿秒脉冲的长度。在此基础上，我们产生并测量到了 67 阿秒的极紫外脉冲。

参考文献

- [1] Antoine P, L’huillier A, Lewenstein M. Attosecond pulse trains using high-order harmonics [J]. *Physical review letters*. 1996, 77: 1234–1237.
- [2] Paul P M, Toma E, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. *Science*. 2001, 292 (5522): 1689–1692.
- [3] Corkum P, Burnett N, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses [J]. *Optics letters*. 1994, 19 (22): 1870–1872.
- [4] Platonenko V, Strelkov V. Single attosecond soft-x-ray pulse generated with a limited laser beam [J]. *JOSA B*. 1999, 16 (3): 435–440.
- [5] Chang Z. Fundamentals of attosecond optics [M]. CRC Press Boca Raton, 2011.
- [6] Sola I, Mével E, Elouga L, et al. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating [J]. *Nature Physics*. 2006, 2 (5): 319–322.
- [7] Chang Z. Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating [J]. *Physical Review A*. 2007, 76 (5): 051403.
- [8] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrier-envelope phase stabilized lasers [J]. *Physical review letters*. 2008, 100 (10): 103906.
- [9] Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field [J]. *Optics letters*. 2006, 31 (7): 975–977.
- [10] Oishi Y, Kaku M, Suda A, et al. Generation of extreme ultraviolet continuum radiation driven by a sub-10-fs two-color field [J]. *Optics express*. 2006, 14 (16): 7230–7237.

-
-
- [11] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers [J]. [Physical review letters](#). 2009, 103 (18): 183901.
- [12] Gilbertson S, Khan S D, Wu Y, et al. Isolated attosecond pulse generation without the need to stabilize the carrier-envelope phase of driving lasers [J]. [Physical review letters](#). 2010, 105 (9): 093902.
- [13] Gilbertson S, Mashiko H, Li C, et al. A low-loss, robust setup for double optical gating of high harmonic generation [J]. [Applied Physics Letters](#). 2008, 92 (7): 071109–071109.
- [14] Budil K S, Salieres P, L’Huillier A, et al. Influence of ellipticity on harmonic generation [J]. [Physical Review A](#). 1993, 48 (5): R3437.
- [15] Kane D J, Trebino R. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating [J]. [Quantum Electronics, IEEE Journal of](#). 1993, 29 (2): 571–579.
- [16] Trebino R, Kane D J. Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating [J]. [JOSA A](#). 1993, 10 (5): 1101–1111.
- [17] DeLong K, Trebino R, Hunter J, et al. Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation [J]. [JOSA B](#). 1994, 11 (11): 2206–2215.
- [18] Iaconis C, Walmsley I A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses [J]. [Optics letters](#). 1998, 23 (10): 792–794.
- [19] Mairesse Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts [J]. [Physical Review A](#). 2005, 71 (1): 011401.
- [20] Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera. [J]. [Physical review letters](#). 2002, 88 (17): 173903–173903.
- [21] Kane D J, Trebino R. Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating [J]. [Optics letters](#). 1993, 18 (10): 823–825.
- [22] DeLong K W, Fittinghoff D N, Trebino R, et al. Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections [J]. [Optics letters](#). 1994, 19 (24): 2152–2154.
- [23] Barakat R, Newsam G. Necessary conditions for a unique solution to two-dimensional phase recovery [J]. [Journal of mathematical physics](#). 1984, 25: 3190.

-
-
- [24] Stark H. Image recovery: theory and application [M]. Access Online via Elsevier, 1987.
- [25] Izraelevitz D, Lim J. A new direct algorithm for image reconstruction from Fourier transform magnitude [J]. *Acoustics, Speech and Signal Processing, IEEE Transactions on*. 1987, 35 (4): 511–519.
- [26] Kane D J, Rodriguez G, Taylor A, et al. Simultaneous measurement of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram in a single shot [J]. *JOSA B*. 1997, 14 (4): 935–943.
- [27] Mashiko H, Oguri K, Sogawa T. Attosecond pulse generation in carbon K-edge region (284 eV) with sub-250 μJ driving laser using generalized double optical gating method [J]. *Applied Physics Letters*. 2013, 102 (17): 171111–171111.
- [28] Chini M, Gilbertson S, Khan S D, et al. Characterizing ultrabroadband attosecond lasers [J]. *Opt. Express*. 2010, 18 (12): 13006–13016.
- [29] Ko D H, Kim K T, Nam C H. Attosecond-chirp compensation with material dispersion to produce near transform-limited attosecond pulses [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2012, 45 (7): 074015.
- [30] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. *Science*. 2006, 314 (5798): 443–446.
- [31] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics [J]. *Science*. 2008, 320 (5883): 1614–1617.
- [32] Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch [J]. *Optics letters*. 2012, 37 (18): 3891–3893.
- [33] http://henke.lbl.gov/optical_constants/getdb2.html.
- [34] Dachraoui H, Auguste T, Helmstedt A, et al. Interplay between absorption, dispersion and refraction in high-order harmonic generation [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2009, 42 (17): 175402.
- [35] L’Huillier A, Lewenstein M, Salieres P, et al. High-order harmonic-generation cut-off [J]. *Physical review. A*. 1993, 48 (5A): R3433–R3436.
- [36] Altucci C, Starczewski T, Mevel E, et al. Influence of atomic density in high-order harmonic generation [J]. *JOSA B*. 1996, 13 (1): 148–156.
- [37] Poletto L, Frassetto F, Villoresi P. Design of an extreme-ultraviolet attosecond compressor [J]. *JOSA B*. 2008, 25 (7): 133–136.
- [38] Frassetto F, Villoresi P, Poletto L. Optical concept of a compressor for XUV pulses in the attosecond domain [J]. *Optics Express*. 2008, 16 (9): 6652–6667.

- [39] Kohler M C, Keitel C H, Hatsagortsyan K Z. Attochirp-free High-order Harmonic Generation [J]. [Optics Express](#). 2011, 19 (5): 4411–4420.

第四章 阿秒瞬态吸收光谱技术

单个阿秒脉冲在研究电子的超快动力学上的一个重要应用是阿秒瞬态吸收光谱技术 (Attosecond Transient Absorption Spectroscopy)。瞬态吸收光谱是飞秒领域的一种十分常用的手段。直到 2010 年, 人们才把它成功引入到阿秒领域^[1-3], 并迅速成为对超快动力学过程进行阿秒时间分辨的主要手段。相对于其他技术, 阿秒瞬态吸收光谱技术是一种纯光学手段, 有着诸多的优点。本章主要介绍阿秒瞬态吸收光谱技术的实验装置及基本理论。

4.1 阿秒瞬态吸收光谱技术简介

阿秒瞬态吸收光谱技术通过测量原子及分子体系等对阿秒脉冲瞬态吸收谱的改变来研究目标体系在阿秒尺度上的超快动力学过程。其基本过程是: 首先, 目标原子在一束处于极紫外或者软 X 射线波段的阿秒脉冲作用下跃迁至各个激发态和电离态。这一步是单光子过程, 所以阿秒脉冲的强度并不要求很高; 然后, 一束红外飞秒激光将引起各激发态之间或激发态与电离态之间的耦合, 进而改变体系对阿秒脉冲的吸收谱。红外激光的强度一般控制在 10^{13} W/cm^2 量级或者更低, 以避免红外激光引起基态到激发态的跃迁; 最后, 改变红外激光与阿秒脉冲的延时, 通过分析不同延时下的吸收谱来研究体系在亚飞秒时间尺度上的动力学过程。在实验中, 阿秒脉冲触发体系的动力学过程。一定延时之后, 飞秒脉冲作用于系统并引入特定的改变。尽管有着触发脉冲和延时脉冲, 这一实验方案却不是严格意义上的泵浦—探测技术, 这是因为测量的光谱信号在本质上并不是一种瞬时物理量, 它与原子极化率在时间上的积分相关。

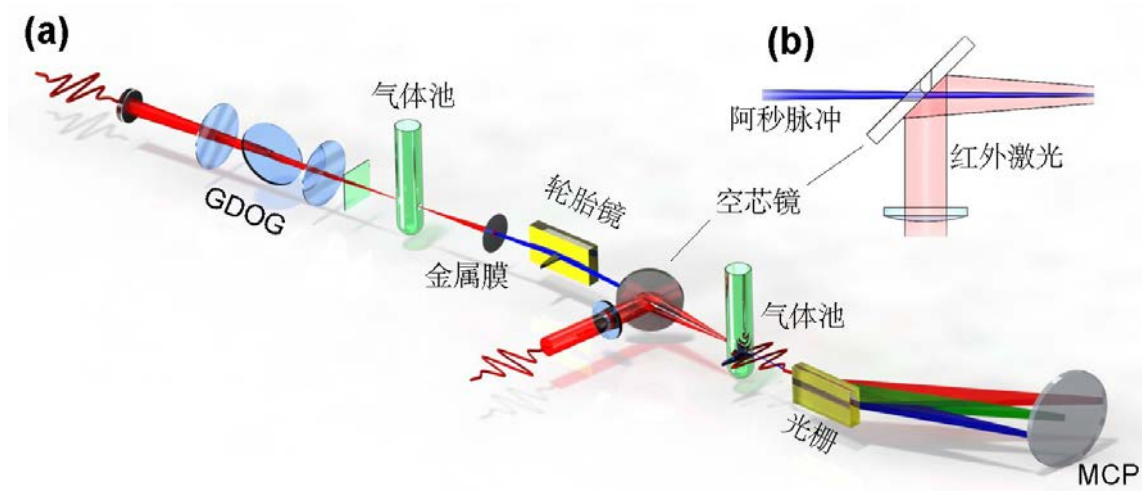


图 4.1 阿秒瞬态吸收光谱实验示意图

图4.1 (a) 是一个典型的阿秒瞬态吸收光谱实验的示意图。整个装置可以分为三个部分：单个阿秒的产生、样品吸收和光谱探测。图4.1中，GDOG 技术被用来产生单个阿秒脉冲。飞秒激光在经过 GDOG 光学器件之后形成半个或一个周期的选通门并聚焦到气体靶上产生单个阿秒脉冲。在气体靶之后仍然会有残留的红外激光，并与单个阿秒脉冲共线传播，通常用一片金属膜将其滤掉。为了保证到达样品时阿秒脉冲有一定的强度，需要根据样品的吸收谱范围选择合适的金属膜。然后阿秒脉冲被一掠入射镀金轮胎镜聚焦到第二个盛有样品气体的玻璃管上。同时红外飞秒激光也被一个透镜聚焦到样品上。阿秒脉冲和飞秒激光在达到样品之前通过一个空芯镜进行合束，如图 (b) 所示，其中阿秒脉冲从空芯镜的小孔中穿过，而红外激光被镀银表面反射。在有的实验方案中，也用同心镜来合束^[4]。在样品之后，一个由平焦场光栅和微通道板 (MCP) 构成的谱仪探测并记录经过吸收之后的阿秒脉冲光谱。

为了避免单个阿秒脉冲被空气或其他气体吸收，整个光路需要处在 10^{-3} torr 以下的真空环境中。考虑到微通道面板对真空的要求甚至更高 (10^{-6} torr 以下)，阿秒瞬态吸收光谱系统一般由能保持高真空的腔体组成。此外，任何系统都不可避免总是存在着机械振动，但对于阿秒瞬态吸收光谱实验，几十纳米的振动就会对实验结果造成较大误差，所以要达到阿秒量级时间分辨，就必须对整个系统的振动进行良好的控制和精确的补偿。下节将详细介绍我们的阿秒瞬态吸收光谱实验系统。

4.2 阿秒瞬态吸收光谱实验系统

根据阿秒瞬态吸收光谱的基本原理和图4.1的光路图，我们在佛罗里达阿秒科学技术中心 (FAST) ^[5] 搭建了一套阿秒瞬态吸收光谱装置，并成功进行了氦气、氖气、氩气及氢气的瞬态吸收实验。整个装置由飞秒激光系统、单个阿秒产生系统、阿秒脉冲的吸收装置、延时锁定系统及高分辨极紫外光谱仪组成。

4.2.1 FAST 飞秒激光系统

图4.2是 FAST 飞秒激光系统的光路图。这套激光装置和图2.2所示的激光系统一样都是基于多通啁啾放大技术。振荡级输出的种子光重复频率为 76MHz，能量为 ~ 2 nJ，脉冲长度为 10 fs。种子光首先通过 Pockel 盒把重复频率降为 1 KHz，然后被送入 offner 展宽器^[6]，脉冲长度被拉伸为 ~ 80 ps。而后种子光经过光隔离器进入放大级 I，在折返镜的引导下，种子光将先后 14 次通过钛宝石晶体，能量被放大至 3 mJ。之后脉冲被送入放大级 II 继续放大，在这一级中，脉冲只通过一次钛宝石晶体，能量增长至 5 mJ。然后脉冲经过扩束进入压缩级，最终输出脉冲的脉冲宽度为 19 fs、能量可达 3 mJ 以上。

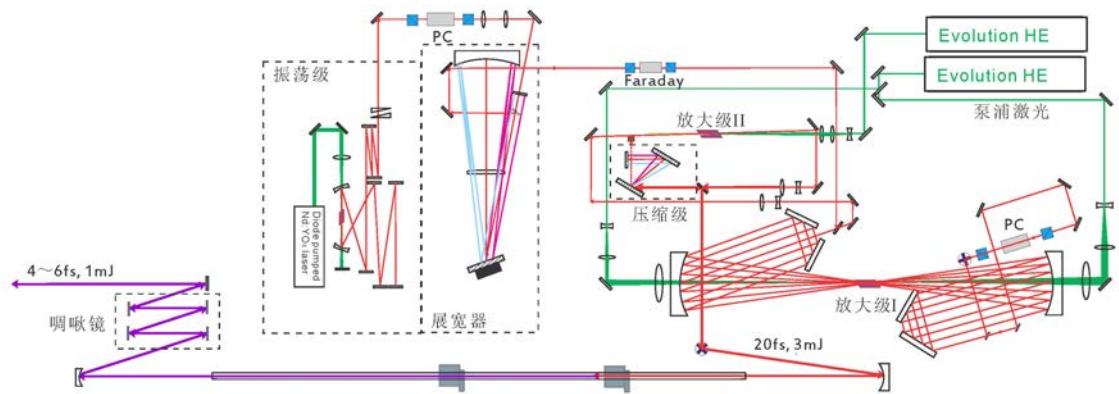


图 4.2 FAST 飞秒激光系统光路图

相对于大多数多通放大系统，FAST 激光器有着更高的增益 5×10^6 ，但却有着更宽的光谱和更短的脉冲长度。这主要得益于我们对增益变窄的控制。在种子光进入放大级之前，我们利用特殊镀膜的滤波片削弱了增益中心（780 nm）波段的光谱分量，极大抑制了放大过程的增益变窄效应。放大级输出脉冲的光谱如图4.3 (a) 所示，其半高宽达到 70 nm。图4.3 (c) 中的虚线是与该光谱对应的傅里叶变换极限脉冲，半高宽为 19 fs。但由于展宽器对种子脉冲进行了拉伸，并且在放大过程中，空气、介质镜及钛宝石晶体等光学元件及介质都会对各频谱分量引入不同的相位，因此，必须通过压缩器使各频谱分量的相位重新同步，才能使输出脉冲接近傅里叶变换极限的宽度。在 FAST 激光系统中，展宽器及压缩器所用的光栅刻线密度均为 1200 线 / mm。展宽器的参数及光路中所有光学元件引入的相位都是已知的，因此我们可以通过计算来优化压缩器中的光栅角度及光栅间距，补偿之后的最优相位如图4.3 (b) 所示，其中虚线为群延迟（Group Delay），实线为各频谱分量的相对相位。可以看出各频谱分量的相位差在 1 rad 之内。由测得的光谱和求得的相位可以得出脉冲光强随时间的分布，如图4.3 (c) 中实线所示，其半高宽为 19.1 fs，FROG 的测量结果与之非常吻合。

为了进一步压缩脉冲长度，放大级输出的脉冲被聚焦到一个氦气填充的内径为 450 nm 的空芯光纤中进行光谱展宽。光纤长度为 1 m。展宽后的脉冲经过啁啾镜压缩后可以得到 4~6 fs 的超短激光脉冲。图4.4是用二次谐波 FROG 方法对压缩后的超短脉冲进行测量的结果。其中图 (a) 是实验测量得到的谱图，图 (b) 是 PCGPA 方法反演的谱图，通过比较 (a) 和 (b) 可以发现反演结果与测量结果十分吻合。图 (c) 是重建的光强信号（浅色填充实线）及电场相位（实线）。结果表明所测脉冲的半高宽为 5.4 fs。图 (d) 是重建的光谱强度（浅色填充实线），点线是实际测量得到的光谱强度，二者大致吻合很好，表明测量结果比较可信。有些细微差别可能来自于不同频率成分倍频效率的差异以及探测效率的不同。实线

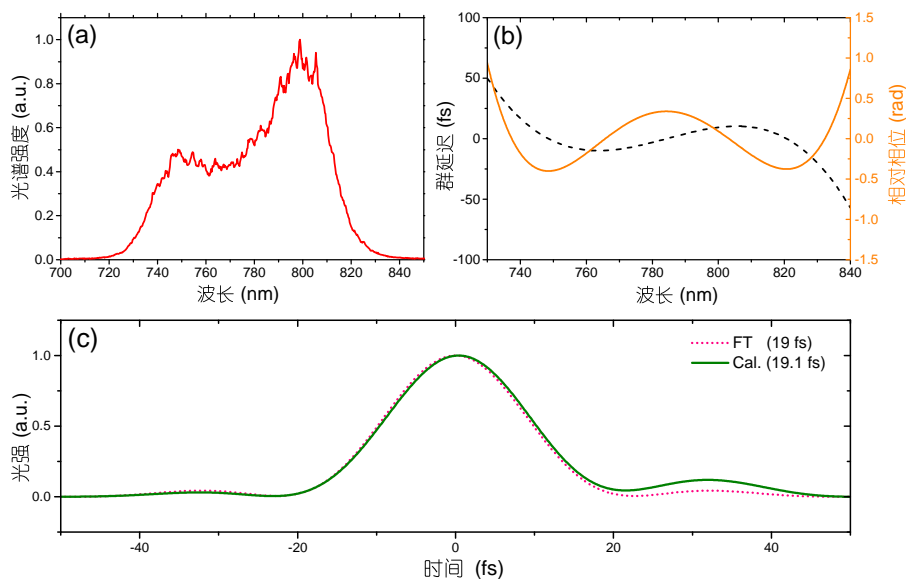


图 4.3 FAST 激光器放大级输出光束。(a) 放大级输出光谱；(b) 计算得到的各光谱分量群延迟（虚线，左轴）及相对相位（实线，右轴）；(c) 傅里变换极限脉冲（点线）及由 (b) 中相位重建的脉冲（实线）

是重建的光谱相位，其中微小的振荡是由啁啾镜的色散引起的。在整个光谱范围内，相位变化非常小，表明脉冲宽度被压缩得非常接近傅里叶变换局限。

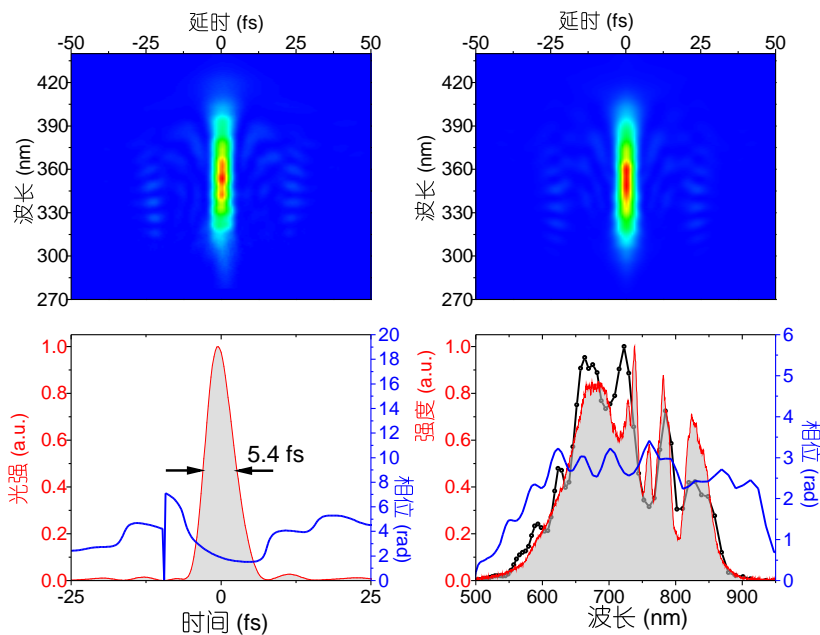


图 4.4 5.4 fs 脉冲的 FROG 测量结果。(a) 实验测量的谱图；(b) PCGPA 方法反演的谱图；(c) 重建的光强信号（浅色填充实线）及电场相位（实线）；(d) 实验测量的光谱（点线）、重建的脉冲光谱（浅色填充实线）及其相位（实线）

4.2.2 单个阿秒的产生装置

超短飞秒激光首先被送到如图4.5所示的装置产生单个阿秒脉冲。用于构造GDOG电场的石英片和布儒斯特玻璃片都固定旋转架上，以便精确调整角度。激光被球面镜聚焦到位于真空腔中的气体池上。BBO位于真空腔之内，可由真空旋转接头调整角度。该装置要求飞秒激光为水平偏振，所以经过GDOG光学器件后驱动电场是水平偏振的，选通电场是竖直偏振的。BBO采用一类相位匹配($o+o \rightarrow e$)，对选通电场(o光)进行倍频，因此BBO的光轴在水平平面内，这样得到的倍频场偏振与驱动电场一致。旋转BBO的角度是主要是为了调节BBO造成的驱动电场和选通电场的延时，以便补偿第二块石英片引入的延时。从图中可以看出，旋转接头调整的是相位匹配角，但BBO的厚度及e光的折射率都会随之改变，因此这种调整十分敏感，需要真空旋转接头有精细调节能力。第一块石英片的厚度需要根据脉冲长度按照公式(3.9)进行调整。对于800 nm的光，石英片e光和o光的折射率之差为 $\Delta n \approx 0.009$ ，所以每个周期的延时需要的石英片厚度约为 $L \approx 88.5 \mu\text{m}$ 。第二块石英片的厚度通常取为 $440 \mu\text{m}$ ，对应于约5个周期的延时。BBO的相位匹配角约为 29° ，相应的e光与o光的折射率之差为 $\Delta n \approx -0.027$ 。取其厚度为 $141 \mu\text{m}$ ，对应于 -5.25 个周期的延时，这样，它和第二个石英片的总延时为 -0.25 个周期，是一个零阶 $\frac{1}{4}$ 波片。在GDOG中，我们通常取 $\varepsilon = 0.5$ ，也就是要反射掉50%的驱动电场，这需要两块以选通电场(p光)的布儒斯特角放置的玻璃片(SF11)。

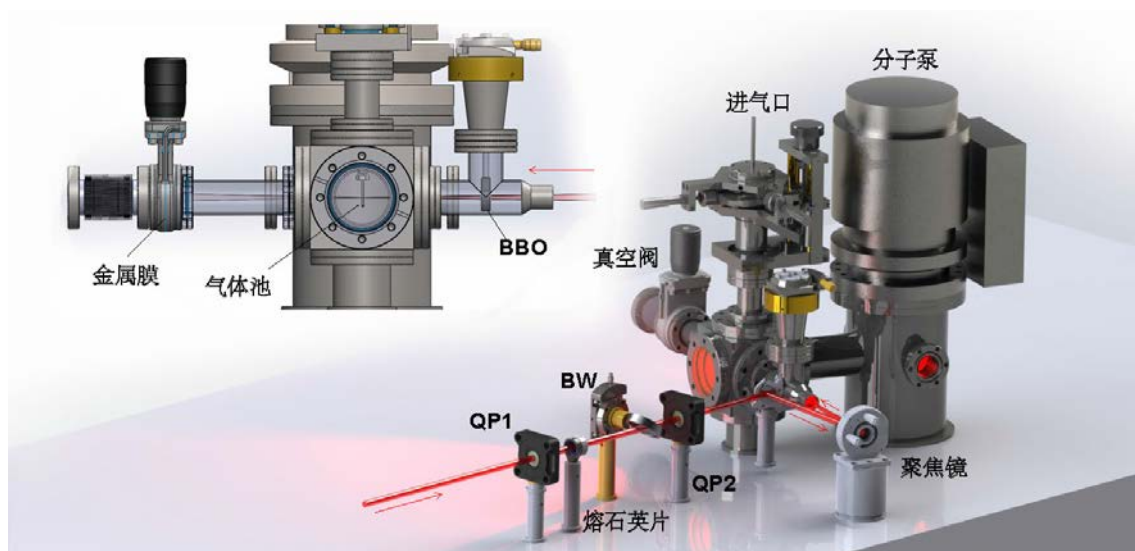


图 4.5 单个阿秒产生装置

因为超短激光脉冲在经过啁啾镜之后还要传播一段距离才能到达气体靶，所以啁啾镜需要引入过多的负啁啾，用以预补偿后来传播过程中空气、波片及真空

腔窗口片等带来的正色散。为了使气体靶处的脉冲长度最短，我们在光路中加入一定厚度的熔石英片来精确调整色散。这种优化可以用线性偏振情况下高次谐波强度或者激光在空气中成丝的程度来做为参考。

实验中，用于产生单个阿秒脉冲的激光脉冲能量约为 300 mJ，球面镜的焦距为 500 mm，在焦点处的光强可达 $2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 。为了优化高次谐波的相位匹配，我们在真空腔入口之前加入可调光阑来调节光强大小。对于原子或分子的束缚态及电离域附近的瞬态吸收实验，一般需要 30 eV 以下的阿秒脉冲，所以通常选用电离能较低的氙气或者氩气来产生单个阿秒脉冲。在这一波段，铝膜或者铟膜都存在着透射窗口，可以用来滤除残留红外激光。图 4.6 (a) 给出了 200 nm 厚的铝膜和铟膜的透过率，其中铝膜的透射窗口为 15–72 eV，适合于氦气、氖气等原子的瞬态吸收实验，而铟膜的透射窗口为 11–17 eV，适合用于氙气原子和氢分子等的瞬态吸收实验。在实验装置中，金属膜被固定在插板阀的中心，这样即能滤除残留红外激光，又能阻止气体从阿秒脉冲产生腔扩散到后续腔体中，起到差分泵浦的作用。图 4.6 (b) 是利用氩气产生单个阿秒脉冲并经过铝膜吸收之后的连续谱。图 4.6 (c) 中的连续谱同样是从氩气产生，但却经过铟膜的吸收，二者的能量范围都在图 (a) 所示的透射窗口范围内。

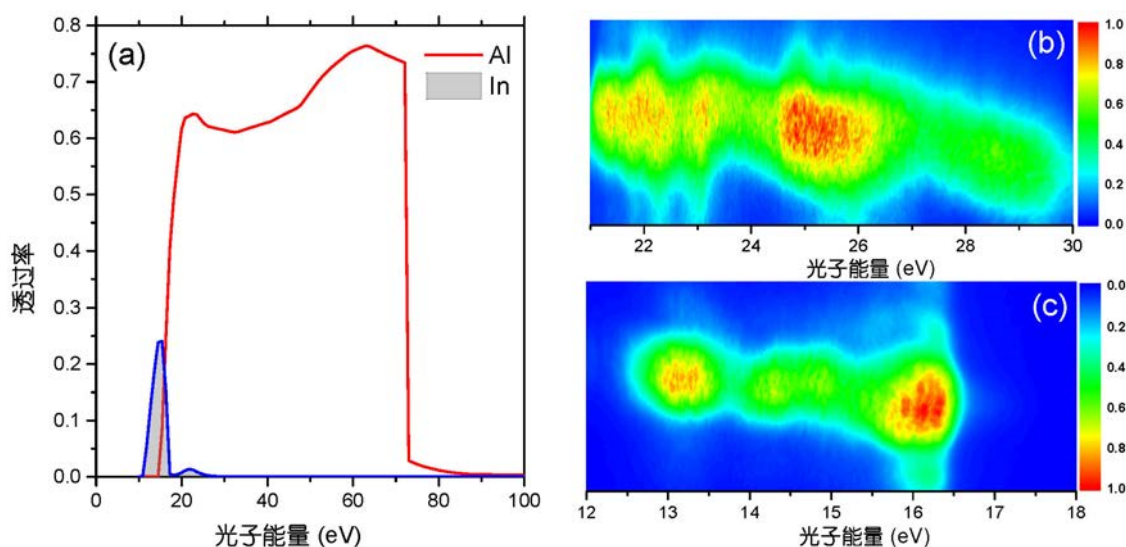


图 4.6 金属膜透射窗口 (a) 及经过铝膜 (b) 和铟膜 (c) 吸收之后的单个阿秒连续谱

4.2.3 阿秒脉冲的吸收

经过金属膜之后，单个阿秒脉冲被送入聚焦合束腔，如图 4.6 所示。阿秒脉冲以 9.6° 掠入射角打到镀金轮胎镜 ($f=270 \text{ mm}$) 上，会聚的阿秒脉冲穿过空芯镜中间的小孔最终聚焦在第二个气体池中。同时，另一束飞秒激光（探测光）会从腔

体的侧面窗口进入，在经过透镜后，再由空芯镜的镀银反射面反射至气体池。要保证阿秒脉冲和飞秒激光在空芯镜之后共线传播并在焦点处（气体池）重合，就必须做到两点：第一，二者在空芯镜上的位置同心，第二，二者方向一致。当腔体处于真空状态下，我们可以通过电动镜架调整空芯镜的角度，但空芯镜的位置是不能调节的，所以在安装时就必须保证阿秒脉冲通过空芯镜的小孔中心。为了能够准确对光，我们在空芯镜之后安装了一个可以由线性推进器在真空状态下移动的反射镜。对光时，先移开产生装置中的金属锁，用透过来的红外驱动光代替阿秒脉冲光束，然后放下反射镜，探测光和驱动光都会被反射出真空腔外，其中，探测光中心有一与空芯镜小孔对应的暗斑，调整探测光的方向，使暗斑位于探测光光斑的中心，这样就能确保探测光束与阿秒脉冲光束同心。然后用 CCD 对两束光的焦点成像，并通过电动镜架调整空芯镜的角度，使两个焦点重合，这样就完成了合束。阿秒光束和红外激光除了要在空间上重合，二者也要在时间上重合，这可以通过调节探测光路中的延迟线来做到。二者重合与否，可以通过观察两束光的焦点在 CCD 上有没有干涉现象来进行判断。注意两束光都是极短的脉冲，大于 $5 \mu\text{m}$ 的光程差就可能使二者在时间上完全分开，因此，在光路调节时，需要对延迟线作缓慢而细致的扫描。

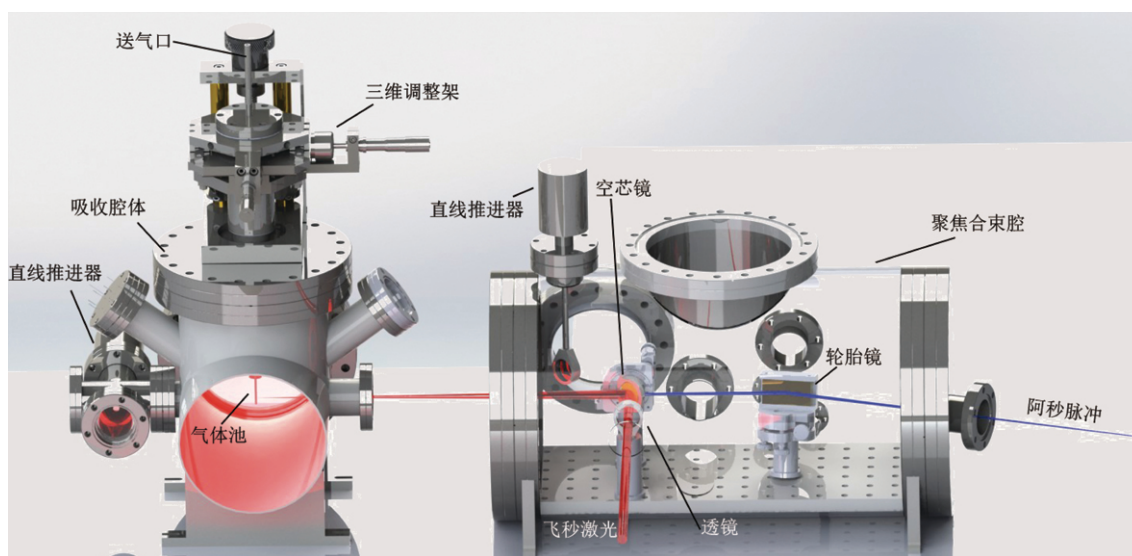


图 4.7 阿秒瞬态吸收光谱技术的吸收装置

当调整好两束光的空间重合和时间重合后，取出反射镜，两束光便能聚焦到用于吸收的气体池上。气体池上有预先用激光钻好的小孔。我们借助吸收腔体后的反射镜（固定在另一个直线推进器上），可以将吸收腔体内两束光的焦点成像于腔外的 CCD 上，然后调整气体池的位置，把气体池的小孔放在焦点中心。探测激光经过空芯镜后为一缺失了中心的圆环光斑，其焦点是呈贝塞尔分布的一系列同

心圆环，中心亮斑大小可由 CCD 直接测量。而阿秒脉冲的焦点大小需要通过刀片法来测量，测量结果如图4.8所示。其中实心圆点是刀片在不同位置时透过的阿秒脉冲的光谱强度，实线是半高宽为 $25\ \mu\text{m}$ 的高斯光束进行刀片法测量的理论计算结果，二者十分吻合，表明阿秒脉冲经过轮胎镜聚焦后的焦点大小约为 $25\ \mu\text{m}$ 。而气体池上的小孔大小一般为 $50\sim 80\ \mu\text{m}$ ，因此几乎全部的阿秒脉冲能量都能通过小孔。

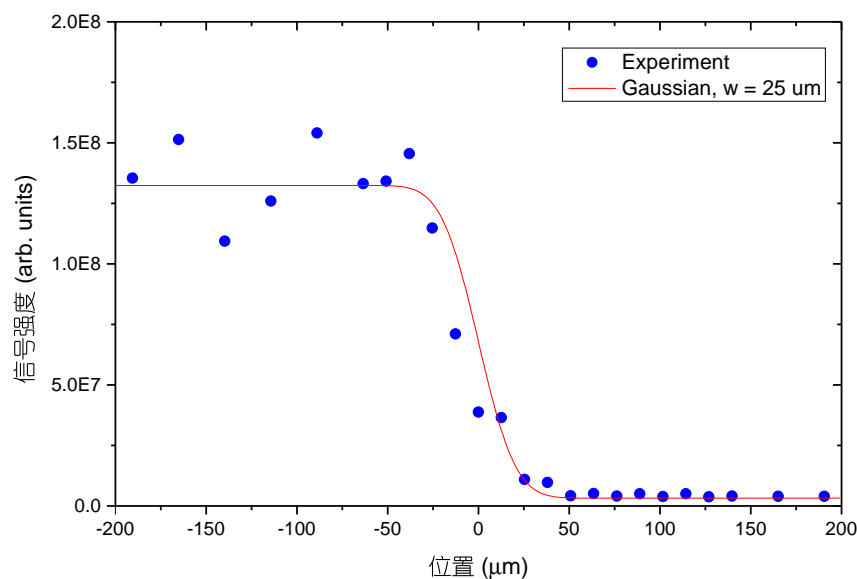


图 4.8 阿秒脉冲焦点的刀片法测量结果

我们使用掠入射轮胎镜聚焦阿秒脉冲，用空芯镜把阿秒脉冲和飞秒激光合束，也有研究小组在类似实验中采用同心的两片球面镜来分别会聚阿秒脉冲和飞秒激光。这种方案中，阿秒脉冲和飞秒激光共线传播，聚焦镜采用 0 度角入射。因而两束光很容易实现在空间和时间上的重合，但必须对聚焦镜进行特殊镀膜才能对阿秒脉冲有较好的反射率，而且其反射带宽通常很窄。相比之下，掠入射的镀金轮胎镜有着更高的反射率和非常大的带宽，能用来聚焦超短阿秒脉冲。此外，由于红外激光和单个阿秒脉冲是分开的，这允许我们能自由地改变红外激光的脉冲强度，脉冲长度以及偏振状态等，具有较大的灵活性。但随之而来的也有一个很大的缺点：二者的相对延迟会受各自光路器件及环境扰动的影响而不稳定。因此在实验中，我们需要对二者的相对延迟进行精确锁定。

4.2.4 延时的锁定与控制

如图4.9所示，实验系统中入射飞秒激光被一个分束片分成两束，其中透射光用于产生单个阿秒脉冲-驱动光，反射光用于改变气体原子的吸收光谱-探测光，

整个光路构成一个 Mach-Zehnder 干涉仪。为了使这两路光的光程差（延时）保持稳定，我们从分束器的另一侧送入一束波长为 532 nm 的绿色连续激光，分出的两束绿光分别经过驱动光与探测光的光路，并在空芯镜处合束产生干涉条纹。然后通过稳定干涉条纹的相位就能对延时进行锁定^[7]。绿激光经过分束器的透射光与红外探测光经过同样的光路，最终到达空芯镜。空芯镜在沿这束绿激光入射方向上（与阿秒脉冲经过的小孔方向垂直）也钻有一小孔，如图 4.1 (b) 所示，因而绿激光会由小孔穿过空芯镜，并从聚焦合束腔的另一侧射出。另一方面，被分束器反射的绿激光会经过红外驱动光的光路。但由于有金属膜存在，绿激光也会被阻挡。因此，必须对金属膜的安装进行如图 4.9 (b) 所示的改进。我们把面积比阿秒光束稍大的金属膜附在透明的中心带孔的玻璃基底上，这样阿秒光束可以经过金属膜后从小孔穿出。而绿激光光束比阿秒光束直径大许多，尽管其中心光束被金属膜阻挡，但外侧也会有光束直接透过玻璃基底，并达到空芯镜。这束绿激光将被空芯镜的背侧反射出真空腔体并与探测光路中的绿激光合束。穿过空芯镜和绕过金属膜的红外激光也同样会混杂在合束的绿激光中，需要用窄带滤波片滤除。

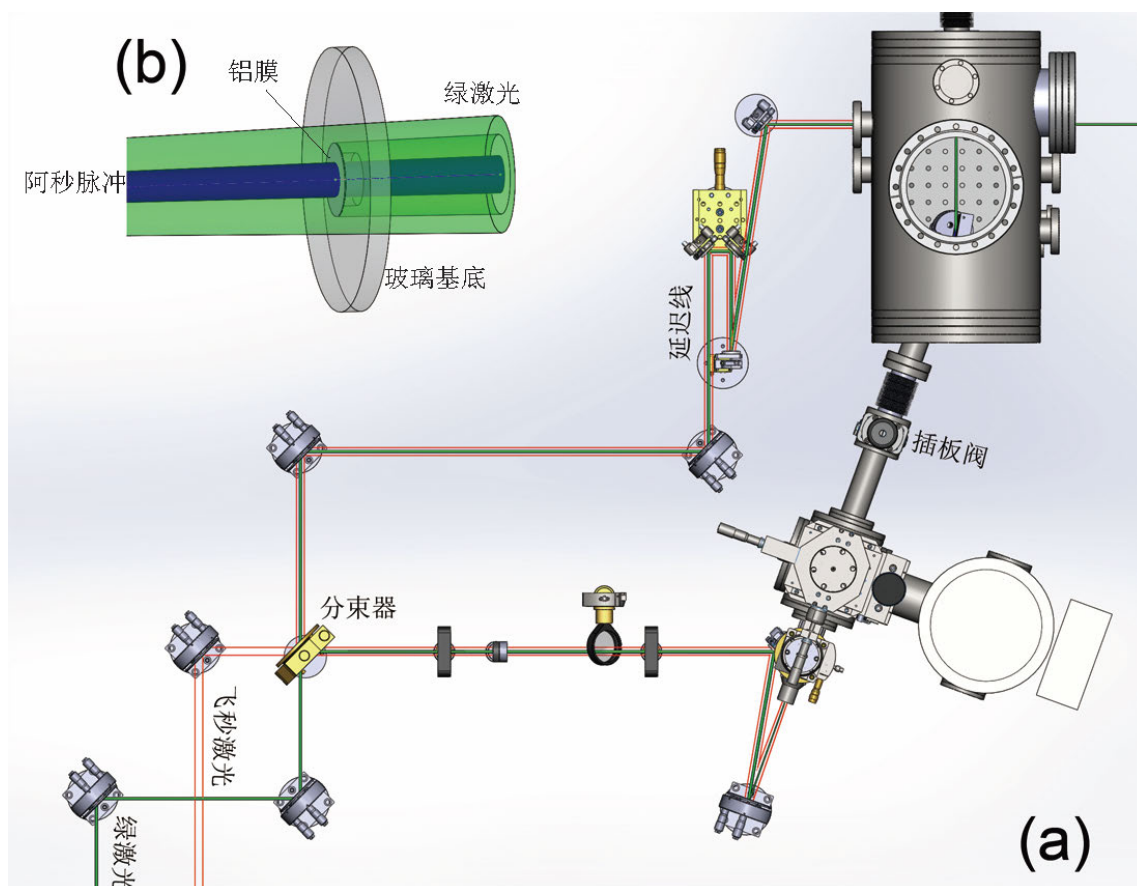


图 4.9 延时的锁定与控制

合束的绿激光会形成干涉条纹，并由 CCD 探测，如图 4.10 (a) 所示。由于实验装置中的各种透射镜片并没有针对绿光镀膜，所以前后表面都会反射一定强度的绿光，导致干涉条纹并不规则，我们需要从中选取一块较好的区域（如图 (a) 中虚线框）来进行相位锁定。把这块区域的光强沿条纹（竖直）方向上取平均值，得到如图 (b) 所示的周期振荡曲线。当两束光的光程差改变时，曲线的各个峰值位置会发生平移。在傅里叶频谱上，该曲线对应一定的载波频率，峰值位置的移动对应于载波相位的变化。因此，锁定相位延迟就是要锁定干涉条纹的载波相位。通过对 CCD 信号作傅里叶分析，我们可以得到载波相位的改变，并相应地生成一个反馈信号去调节延迟线中的压电陶瓷平移台，由此来校正两束光路的光程差。反馈信号由 PID (Proportional-Integral-Derivative) 算法给出：

$$U(t) = K_p \Delta\phi(t) + K_i \int_0^t \Delta\phi(\tau) d\tau + K_d \frac{d\Delta\phi(t)}{dt} \quad (4.1)$$

其中 $U(t)$ 是 t 时刻加到平移台上的电压， $\Delta\phi(t)$ 是相位相对于设定值的改变量。通过调节 K_p 、 K_i 和 K_d 三个参数的大小，便能锁定延时。

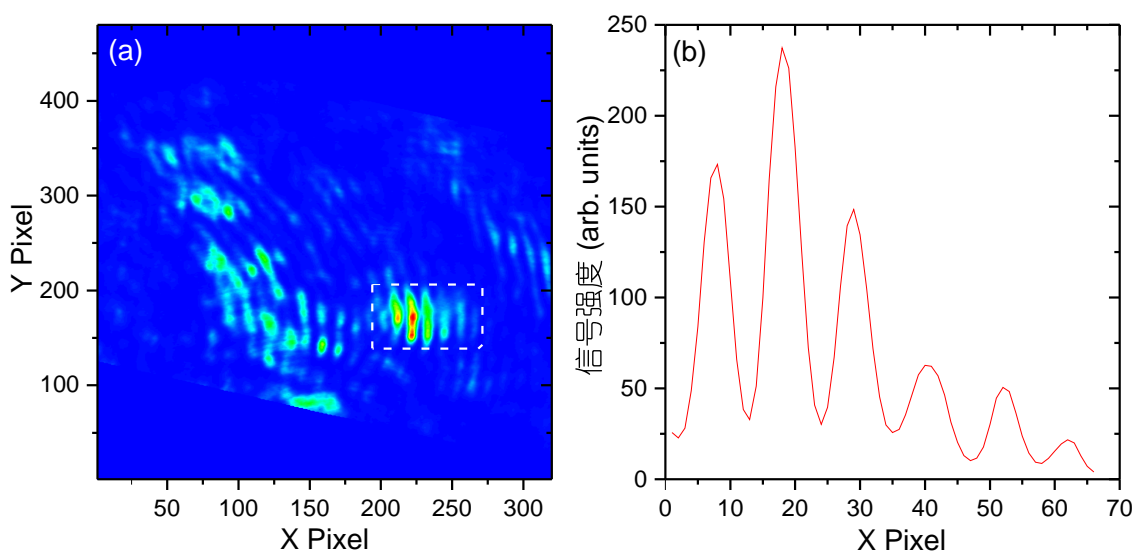


图 4.10 绿激光干涉纹

反馈信号总是要和一定的相位设定值进行比较才能计算得出，因此，改变设定值就能把延时调整到任意我们需要的数值，这样，实验中就可以通过步进增加相位设定值来实现延时的扫描。需要注意的是，大于 2π 的突变，系统是无法准确探测的，所以在调整时，每次施加的电压反馈量只允许改变很小的延时，以免造成过大的相位改变。图 4.11 是对相位进行扫描时测得干涉条纹相位的变化。其中图 (a) 是探测到的干涉条纹的相位与相位设定值的差别。在三分多钟的时间，相位一直锁定在设定值附近。其均方差 (RMS) 仅为 78.5 mrad，对应于 22 as 的

延迟改变。图 (b) 是测量的干涉条纹相位，可以看出系统是以 1 rad (或 282 as) 为步长对延时进行扫描的，每个延时的稳定时间为 20 s。扫描步长和稳定时间可以根据需要进行调整，数据采集应该在延时稳定时间内完成。图 (c) 是反馈到压电陶瓷平移台上的实时电压，可以看出电压信号随延时的改变呈不规则的缓慢变化，这正是校正系统随机振动的结果。系统中，压电陶瓷平移台接受的输入电压为 0–10 V，对应于 15 μm 的移动距离，造成的光程差及延时的改变分别为 30 μm 和 100 fs。

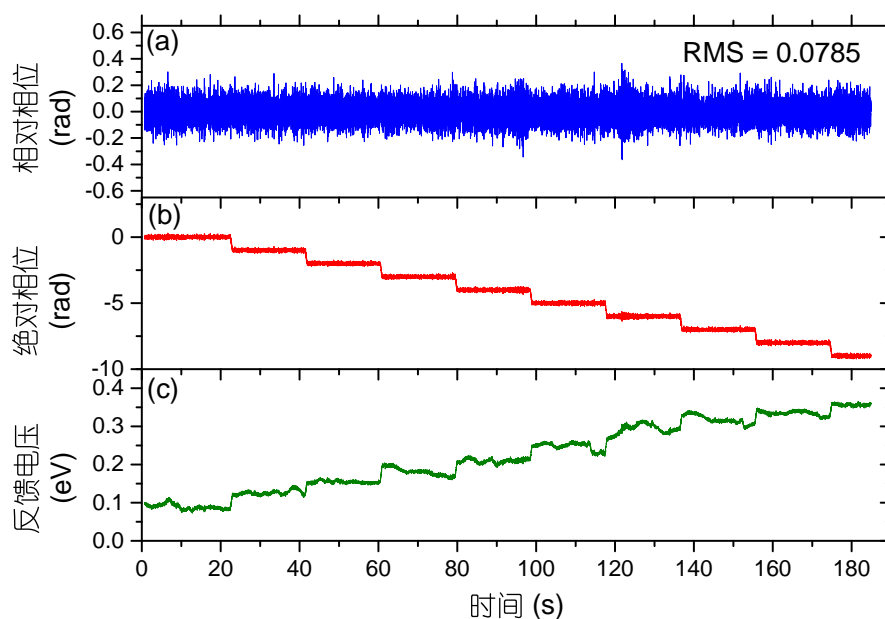


图 4.11 延时的锁定与扫描

4.3 极紫外谱议的设计与标定

经过吸收腔体后，阿秒脉冲的光谱被极紫外谱议测量。在阿秒瞬态吸收光谱实验中，红外激光引发的电子动力学过程反映在透过的阿秒脉冲光谱中，表现为吸收线位置、宽度及吸收强度等的变化，所以极紫外谱议的分辨率及测量准确性十分重要。我们搭建了一套以极紫外平焦场光栅为分光元件、以 MCP 为探测器，以 TEC 冷却的 CCD 为记录器的高分辨率谱议，并提出了能准确标定谱议的原位标定方法。

4.3.1 极紫外平焦场光栅

极紫外谱议的作用是把入射脉冲中不同波长的分量在空间上分开并分别聚焦到探测器上。一般可由球面聚焦镜加平面光栅配合完成或者由一块球面光栅单独完成。若光栅的刻线均匀，各个不同波长分量的焦点就会分布一个罗兰圆曲面上。

但是常用的探测元件多为平面结构，如 CCD，MCP 等。对于单个阿秒脉冲这样光子能量高且光谱范围很宽的信号，探测面与焦点曲面不重合会大大降低谱仪的分辨率。因此，我们选用能把所有光谱分量被聚焦在一个平面上的平焦场光栅。如图4.12 (a) 所示，平焦场光栅是球面的，并且刻线密度不是常数，而是跟位置呈一定的函数关系。我们谱仪中使用的是 Hitach 公司型号为 001-0640 的平焦场光栅。它的使用方法如图4.12 (b) 所示，光源以角度 $\alpha = 85.3^\circ$ 入射；光源到光栅中心的距离为 $r = 350 \text{ mm}$ ；平焦场位于和光栅面垂直的平面内，与光栅中心的距离为 $r' = 469 \text{ mm}$ ；平焦场长度为 $L=110 \text{ mm}$ ，对应的波长范围为 11–62 nm；光栅的曲率半径为 $R = 5649 \text{ mm}$ ，平均光栅常数为 $d_0 = \frac{1}{1200} \text{ mm}$ ，光栅常数随位置的变化关系为^[8]：

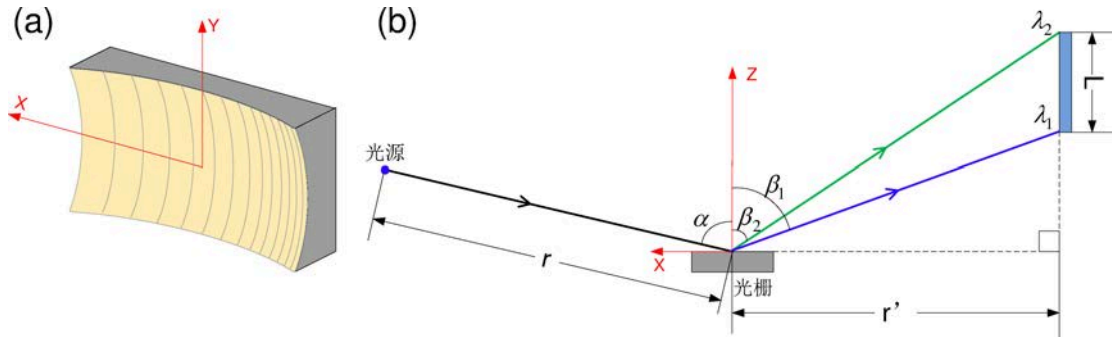


图 4.12 平焦场光栅示意图：(a) 平焦场光栅的结构，(b) 平焦场光栅的使用

$$d(x) = \frac{d_0}{1 + 2b_2 \frac{x}{R} + 3b_3 \left(\frac{x}{R}\right)^2 + 4b_4 \left(\frac{x}{R}\right)^3} \quad (4.2)$$

其中参数 $b_2 = -20$ 、 $b_3 = -455.8$ 、 $b_4 = -11840$ 。使用时光源应该逆着 X 轴（定义见图4.12 (a)）的正向入射，否则各光谱分量不会聚焦在焦平面上。

由于平焦场光栅自身结构的十分复杂，经它分光聚焦之后的焦平面对入射光源的位置及方向非常敏感。利用光栅衍射公式：

$$\sin(\alpha) - \sin(\beta) = \frac{\lambda}{d} \quad (4.3)$$

我们可以对各种条件下得到的平焦场进行计算。如果我们改变入射角，那么各个波长被聚焦的位置就会发生改变，如图4.13 (a) 所示，图中坐标轴的定义见图4.12 (a)。当入射角为 85.3° 的设计值时，所有光谱分量大概在一条与光栅相距 469 mm 的竖直直线上，对应一个垂直于光栅平面的焦平面，这与生产厂家的标称值一致。但从 40 nm （圆点）到 62 nm （方块点）的光谱范围仍然微小地偏离了焦平面 ($<10 \text{ mm}$)。若入射角与设计值不一致，光谱分量位置和形状都会极大地改变。甚至 0.4 度的改变 (84.9°) 都会使平焦场发生移动 ($>10 \text{ mm}$) 和弯曲。在

图4.13 (b) 中, 我们计算了 40 nm 光谱分量的焦点随着物距和入射角的变化情况。结果表明 2 cm 的物距误差会导致焦点位置改变 5 mm, 而 0.5° 的入射角误差会导致焦点位置改变 10 mm, 所以平焦场光栅对角度的变化更为敏感。

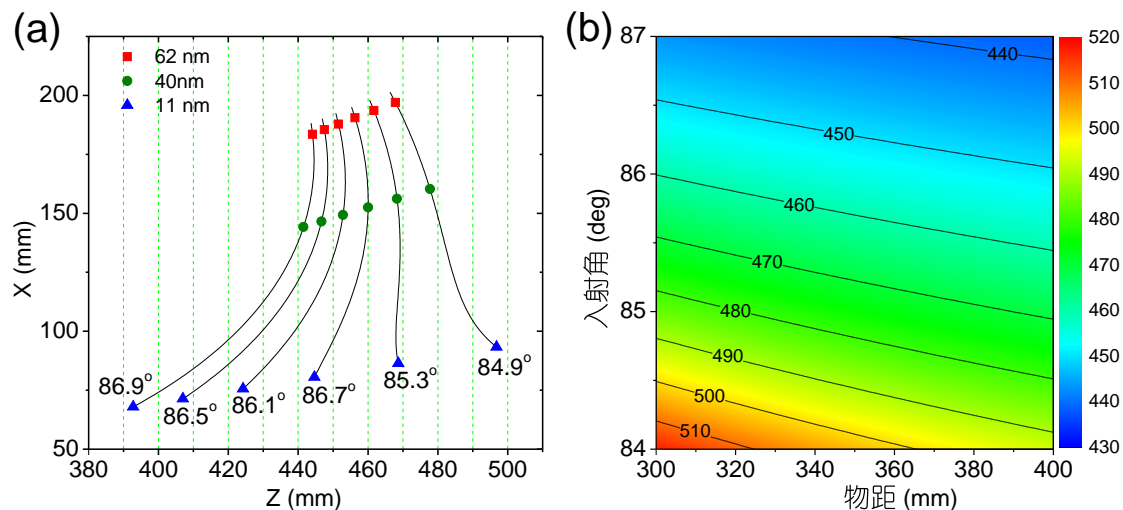


图 4.13 平焦场光栅的焦平面随入射参数的变化关系: (a) 焦平面随入射角的变化关系, (b) 40 nm 光谱分量的焦点位置随入射角及物距的变化关系。

4.3.2 极紫外谱仪的设计

经过对平焦场光栅的分析, 我们发现入射角度对焦平面的影响较大, 在光谱仪中应该允许能经常对它进行优化调节。我们搭建的光谱仪的结构如图4.14所示。用来盛光栅的主腔体是一个法兰直径为 8 英寸的 5 通真空腔, 其底部腔壁上固定有一块光学平板, 用来承载所有光学器件。由于腔壁是对称性的圆柱性结构, 能有效减小大气压力造成的腔体形变。光栅可以由底部的平移台调节 z 向的位置, 并可由固定它的反射镜架调节阿秒脉冲入射角和俯仰角。其中, 用于调节入射角的旋钮被一根韧性耦合线连接到光栅背后法兰的真空旋转接头上, 这样允许在真空条件下对入射角进行调整。在出射法兰和 MCP 之间, 有一个波纹管, 需要在安装时精确设定波纹管的长度, 使 MCP 到光栅中心的距离为所需要的数值。注意到我们的极紫外谱仪中并没有入射狭缝, 这是因为谱仪的入射光源是阿秒脉冲在吸收气体池中的焦点, 其尺寸只有 $25 \mu\text{m}$, 不会显著影响分辨率。

在图4.14中, 我们取物距为其设定值 $r = 350 \text{ mm}$, 但入射角 α 和像距 r' 则需要根据所测的光谱范围来确定。为了研究氦原子和氖原子的瞬态吸收光谱, 光谱仪的测量范围应设计在 20–30 eV, 即 40–60 nm。而由图4.13 (a) 可以发现, 这部分能量谱的焦点刚好没有落在焦平面上, 因此光谱仪不能完全按照光栅的工厂设计值进行搭建。相比之下, 当入射角为 86.5° 时, 待测能谱分量的焦点位置更接近

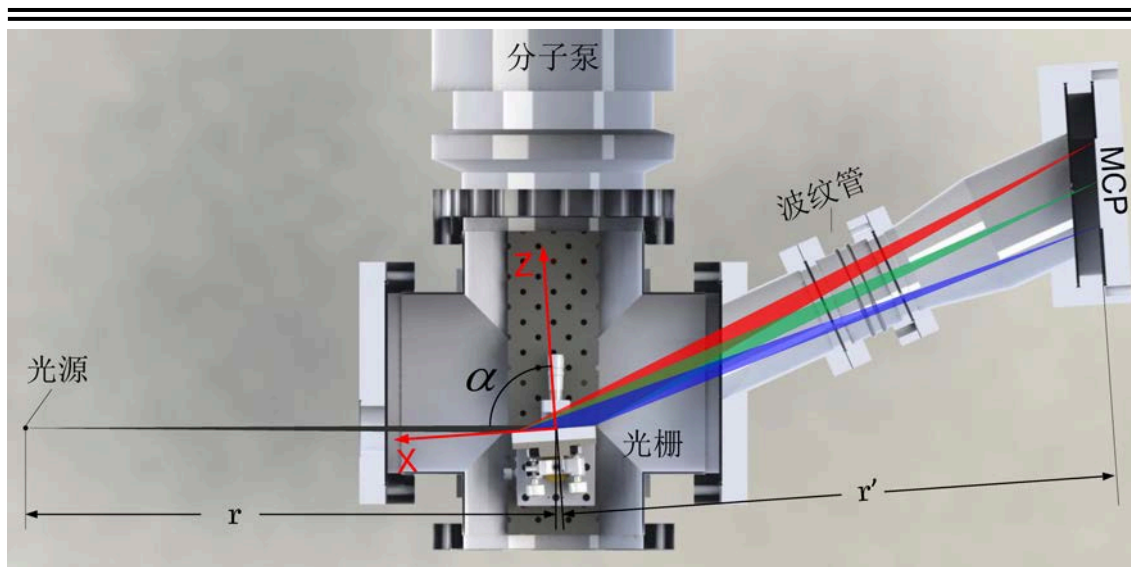


图 4.14 极紫外谱仪装置图

一个竖直平面。因此，我们取入射角 $\alpha = 86.5^\circ$ ，相应的像距取为 $r' = 448 \text{ mm}$ 。为了计算在这种设计下的谱仪分辨率，我们用 Zemax^[9] 对光栅进行光迹追踪。我们在 Zemax 的非序列模式下建模，其“Diffraction Grating”元件能模拟球面变栅距光栅，模型如图 4.15 (a) 所示。图中不同颜色的光线代表不同波长的频谱分量，分别对应于氦气 $1s2p$, $1s3p, 1s4p$ 能级的谱线以及氩原子 $3s3p^64p$ 、 $3s3p^65p$ 、 $3s3p^66p$ 能级的谱线，这些能级都处在 $20\text{--}30 \text{ eV}$ 能量范围内（见下文的表 4.1）。图中焦平面上的白色实线是光强探测器。通过对 20 万条光线追迹之后，探测器上的光强分布如图 4.15 (b) 所示。把探测器信号纵向求和可得焦平面上光谱强度在空间上的分布，如图 (c) 中实线所示。可以发现，虽然图 (b) 中各频谱分量的焦点看起来较宽，但它们的能量大部分集中在很小的空间范围上，半高宽在 $30\text{--}40 \mu\text{m}$ 之间。由光栅衍射方程 (4.3)，我们可以得出焦平面上的能量与空间位置的色散关系：

$$\frac{dx}{dE} = \frac{1240GL}{(1240G - E \sin \alpha)^2 \sqrt{1 - \left(\sin \alpha - \frac{1240G}{E}\right)^2}} \quad (4.4)$$

其中 G 为每纳米的刻线数 (1.2×10^{-3})， $L = 448 \text{ mm}$ 为像距。利用式 (4.4)，我们便能由光谱的空间分布得到光栅的能量分辨率，计算结果见图中标注。6 条谱线所在能量处的分辨率都在 15 meV 以下，最低能处的分辨率高达 6 meV 。为了对比，我们对光栅工厂设定参数也进行了同样的追迹与分析，结果如图 (c) 中灰色填充实线所示。此时的分辨率要比我们的挑选的参数差很多，尤其是在低能区，这与图 4.13 (a) 中的结果一致。

以上对分辨率的计算仅仅只是考虑了光栅自身的色散特性，而极紫外射线的强度探测器及数据采集过程都会影响谱仪的分辨率。我们利用 MCP 探测，其内部

的电子扩散和后续的光学成像系统都会引入误差。相比之下，极紫外 CCD 可以直接探测平面处的光强，而且它们像素分辨率可以做到 $13\ \mu\text{m}$ 甚至更高，可以很好地分辨各谱线的焦斑 ($>30\ \mu\text{m}$)，对分辨率的影响可以忽略。因此，从分辨率的角度来说，极紫外 CCD 更具有优势。但 CCD 的面积一般很小，限制了其探测光谱的范围，所以要根据实验测量的光谱范围和对分辨率的要求等来综合考虑以选取合适的探测器。我们做原子分子的瞬态吸收光谱实验，需要同时对束缚态及电离态能谱范围同时进行测量，因而选用 MCP 作为探测器。

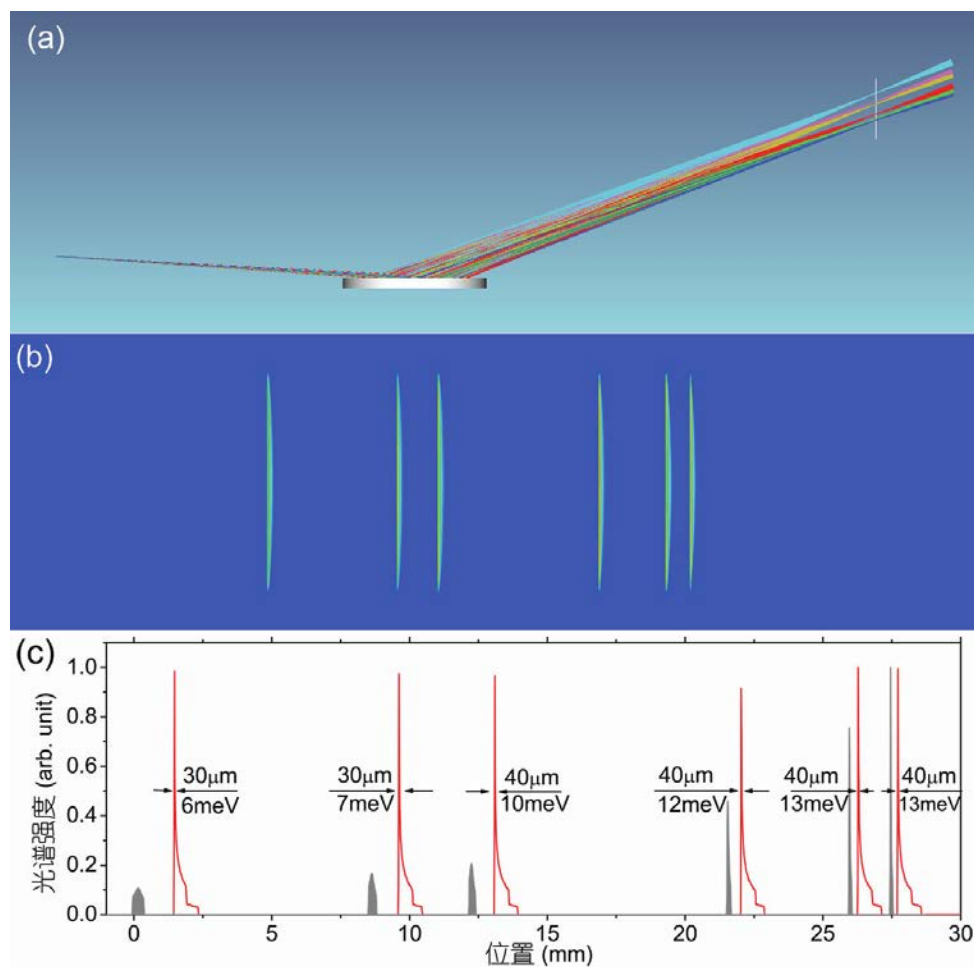


图 4.15 Zemax 光线追迹计算谱仪分辨率: (a) Zemax 模型, (b) Zemax 计算得到的焦平面上的光谱, (c) 理论分辨率

4.3.3 极紫外谱仪的标定

尽管我们对谱仪进行了仔细的设计和光线追迹分析，但在安装过程中难免出现误差，使得谱仪的探测范围和分辨率发生变化，因此对谱仪的标定必不可少。极紫外谱仪的标定有三种常用的方法：利用金属膜的吸收边^[10, 11]、利用激光产生等离子体的特征射线^[12, 13]、以及利用电子束离子阱 (EBIT) 的辐射^[14, 15]。但这

些方法都有着各自的局限性：首先，金属膜所能提供的吸收边太少，会给标定结果带来较大误差；其次，激光等离子体射线太过复杂，并要较高的激光强度；最后，EBIT 是一种大型设备，只有极少数实验室才能建造，并不具有普适性。我们提出了一种基于阿秒瞬态吸收光谱实验系统的原位标定方法^[16]来标定 20–30 eV 的谱仪。这种方法利用氦气 1snp 激发态和氙气 3s3p⁶np 自电离态的特征吸收谱来对谱仪进行标定。这些能级都是已知的，且都在 20–30 eV 的范围内。此外，氙气的自电离态具有为人们熟知的法诺 (Fano) 线型，并具有和谱仪分辨率相似的线宽，能用来确定谱仪的分辨率。

4.3.3.1 谱仪标定的基本思想

在标定实验中，我们分别测量阿秒脉冲经过氦气和氙气的透射谱。氦气的电离能为 24.6 eV，测得的阿秒脉冲透射率在该能量处会向下跃变。此外，从基态到 1snp 激发态的跃迁也会吸收特定能量的光子而在透射谱中形成许多很窄的吸收谷。但由于氦气的 1snp 激发态非常稳定，寿命长达几个纳秒^[17]，所以谱线宽度在 neV 量级，我们的谱仪根本无法探测到。因此，我们在氦气吸收单个阿秒的过程中，同时引入飞秒激光场，其作用是把激发态电子电离，进而减小其能级寿命，达到增大线宽的目的。红外激光场的强度大约在 10¹² W/cm² 量级。因为红外激光电离的是激发态电子，所以它到达气体池的时间应该在阿秒脉冲之后（负延时）。当二者重合时，交流斯塔克效应 (AC Stark) 会改变能级的位置^[18]，在实验中要避免这种情况。

氙气的电离能为 15.7 eV，低于谱仪能测量的最低能量，所以谱仪测得的光谱都在其电离阈之上，因经过强烈吸收而强度较弱。尽管如此，氙气却有一些自电离态在谱仪的测量范围之内^[2, 19]。这些自电离态会与单光子电离过程干涉而形成法诺共振线^[20]，在光谱上表现为透射峰结构。其中，3s3p⁶4p、3s3p⁶5p 和 3s3p⁶6p 的透射峰线宽分别为 80 meV、28.2 meV 和 12.6 meV。它们与谱仪的分辨率相当，从而使谱仪测得的氙气自电态线宽大于谱仪的分辨率，这是因为谱仪测量的透射率或者吸收截面 $\sigma_{exp}(E)$ 本质上是法诺线型与谱仪响应函数的卷积^[21, 22]：

$$\sigma_{exp}(E) = \sigma(E) * G(E) \quad (4.5)$$

其中 $\sigma(E)$ 是氙气自电离态的法诺线型， $G(E)$ 是谱仪的响应函数，可认为是高斯函数：

$$G(E) = e^{-4 \ln(2) \frac{E^2}{\delta E^2}} \quad (4.6)$$

其中 δE 是谱仪的分辨率。因此，谱仪测得的信号是两个宽度相当的信号的卷积，其宽度会大于任意一个参与卷积的信号，也即大于谱仪分辨率。虽然如此，但由于法诺线型是已知的，我们可以通过解卷积过程求得谱仪分辨率。

4.3.3.2 标定结果

单个阿秒脉冲经过氦气和氙气吸收之后的透射谱如图4.16 (a) 所示。实验中用到的氦气和氙气的气压分别为 50 torr 和 35 torr。在氙气的透射光谱曲线上，有 5 个峰值结构，对应的 5 个自电离态在图中由灰色箭头标出，它们的能级大小列在表4.1中。在氦气的吸收实验中，红外激光的强度约为 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ，它与单个阿秒脉冲的相对延时约为 -40 飞秒，测得的透过谱如图中填充曲线所示。其中在 900 像素处的跃变对应于氦气的电离阈值。在电离阈左边，许多的吸收结构对应于不同的 $1snp$ 激发态（见图中黑色箭头标注）。注意到在 $1s2p$ 和 $1s3p$ 之间，也有几个小的吸收结构，它们来自于双色场双光子吸收，对应于 s 态和 d 态的跃迁^[23]，我们会在下一章详细介绍。所有用来标定谱仪的光谱结构对应的能级列于表4.1之中。

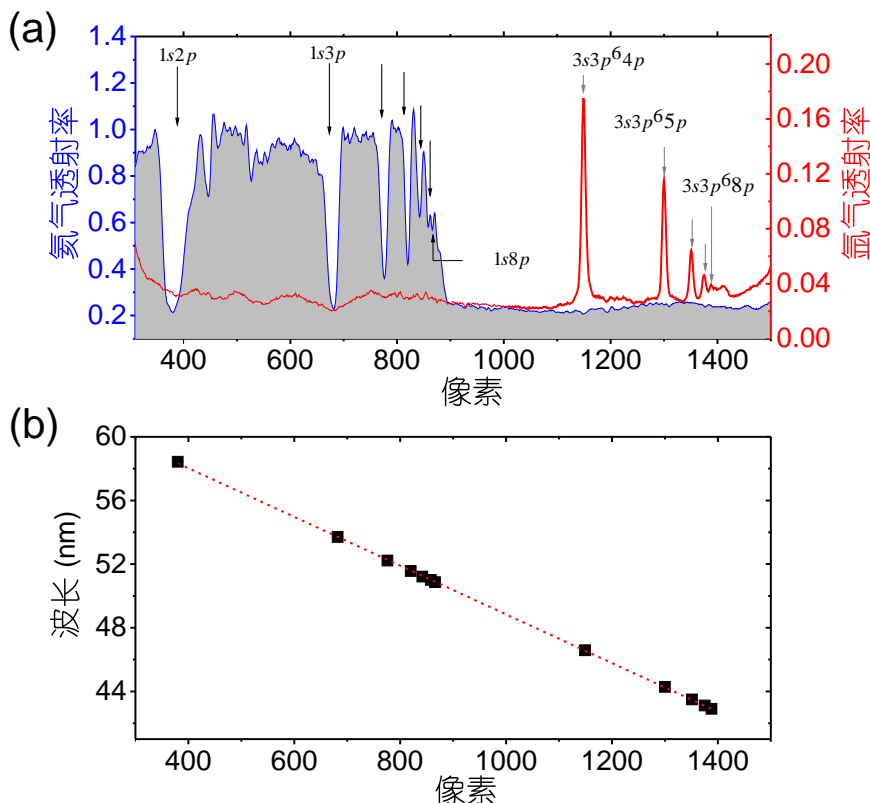


图 4.16 谱仪标定实验结果：(a) 单个阿秒脉冲经过氦气（填充实线，左轴）和氙气（实线，右轴）后的透射率；(b) 波长与 CCD 像素的线性关系拟合

表 4.1 用来标定谱仪的能级

	能级	能量 ^[19, 24] (eV)	测得的线宽 (meV)
He	1s2p	21.242	235.9
	1s3p	23.113	144.3
	1s4p	23.769	86.4
	1s5p	24.073	69.7
	1s6p	24.239	69.5
	1s7p	24.338	-
	1s8p	24.403	-
	Ar	3s3p ⁶ 4p	26.646
3s3p ⁶ 5p		28.023	81.02
3s3p ⁶ 6p		28.543	82.3
3s3p ⁶ 7p		28.793	81.7
3s3p ⁶ 8p		28.933	-

我们一共有 12 条谱线来标定谱仪，它们波长与 CCD 像素位置的关系如图 4.16 (b) 中数据点所示。在 CCD 测量的能量范围内，波长与空间位置大致成线性关系：

$$\lambda = kx + \lambda_0 \quad (4.7)$$

用上式对测量的数据点进行线性拟合便可求得斜率 $k = -0.01531 \text{ nm/pixel}$ 和截距 $\lambda_0 = 64.154 \text{ nm}$ ，对应的直线如图中虚线所示。可以发现拟合的虚线和测量的数据点十分吻合。CCD 上能测到光谱信号的有效像素点范围为 310–1500，可以测得的光谱能量范围为 41.19–59.41 nm，也即 (20.87–30.10) eV，与我们的设计测量范围相符。在标定谱仪之后，我们便能从图 4.16 (a) 中求出每个吸收峰值的线宽，它们也列在表 4.1 中（其中一些吸收结构太弱而没有列出）。谱仪测得的最窄的光谱结构的线宽为 69.5 meV，它对应于氦气的 1s6p 激发态。由前面的分析可知，69.5 meV 其实是谱仪分辨率的上限（最差的情况），真实分辨率会比这个数值更小（好）。因为在我们实验中的红外激光条件下，氦原子 1s6p 态的真实吸收谱宽度并不可知，所以我们无法由此得出精确的分辨率。

4.3.3.3 分辨率分析

根据式 (4.5)，谱仪分辨率可以通过对测得的氩气自电离态的法诺线型进行解卷积来获得。理论上，这种解卷积可以直接对式 (4.5) 进行傅里叶变换。但由

于谱仪能量范围太窄，以及实验数据的误差，这种操作并不可行。因此，我们通过最小化如下的误差函数 $f(\delta E)$ 来确定谱仪分辨率：

$$f(\delta E) = \sum_E |\sigma_{exp}(E) - \sigma(E) * G(E)| \quad (4.8)$$

式中， $\sigma_{exp}(E)$ 是测量的吸收截面，它和直接测量的透过率 $T(E)$ 的关系为 $\sigma(E) \propto -\ln(T(E))$ 。 $\sigma(E)$ 由几个氙气自电离态叠加而成：

$$\sigma(E) = \sum_i a_i \frac{(q_i + \varepsilon_i)^2}{1 + \varepsilon_i^2} + b \quad (4.9)$$

其中 $\varepsilon_i = \frac{E - E_{r_i}}{\Gamma_i/2}$ 。每个自电离态由共振能量 E_{r_i} ，线宽 Γ_i 及 q_i 参数决定。

表 4.2 氙气自电离态的法诺线型参数

能级	Er (eV)	Γ (meV)	q
3s3p ⁶ 4p	26.614	80	-0.22
3s3p ⁶ 5p	28.023	28.2	-0.21
3s3p ⁶ 6p	28.543	12.6	-0.17

这里我们用氙气的 3s3p⁶4p、3s3p⁶5p、3s3p⁶6p 三个自电离态来确定谱仪分辨率，它们的法诺线型参数如表4.2所示。在误差函数中， a_i 、 b 和 δE 是可变参数，需要通过实验数据进行最优化。计算表明 $\delta E = 60 \text{ meV}$ 时，误差函数可取最小值。在图4.17中，我们比较了实验测量的氙气 3s3p⁶4p、3s3p⁶5p、3s3p⁶6p 自电离态的法诺线型（圆点）及由 60 meV 分辨率按式 (4.5) 进行计算得到的卷积结果（实线）。可以发现二者十分吻合，充分证明了谱仪分辨率计算结果的正确性。

尽管光线追迹计算得到了 10 meV 左右的分辨率，但实际中我们谱仪的分辨率只能达 60 meV。这主要来自于极紫外光谱强度探测过程中的误差，主要包含两个方面：一是在 MCP 中，出射电子在飞向荧光屏的过程中具有横向位移^[25]；二是把荧光屏成像到 CCD 相机上会有误差。为了确定降低分辨率的主要因素，我们测量了荧光屏上的量子噪声。当 MCP 加上高电压时，一些微通道孔穴中出现的杂散电子会被放大形成电子束，并最终打在荧光屏上形成一个亮点，这便是 MCP 的量子噪声。由于这种噪声来自于一个微通道孔穴，它可以告诉我们探测系统的极限分辨率。图4.18 (a) 是来自某个微通道孔穴的量子噪声在 CCD 上的像。它在横向和纵向的光强分布分别如图 (b) (c) 中的圆点所示，实线为二者的高斯拟合曲线，其半高宽分别为 131 (± 27) μm 和 151 (± 33) μm 。经过测量，在 CCD 成像系统中，一个 CCD 像素对应于荧光屏上 29.8 μm 大小的光斑，一个量子噪声对应于 CCD 上四个左右的像素，因此 CCD 是能分辨量子噪声的。根据式 (4.7)，谱

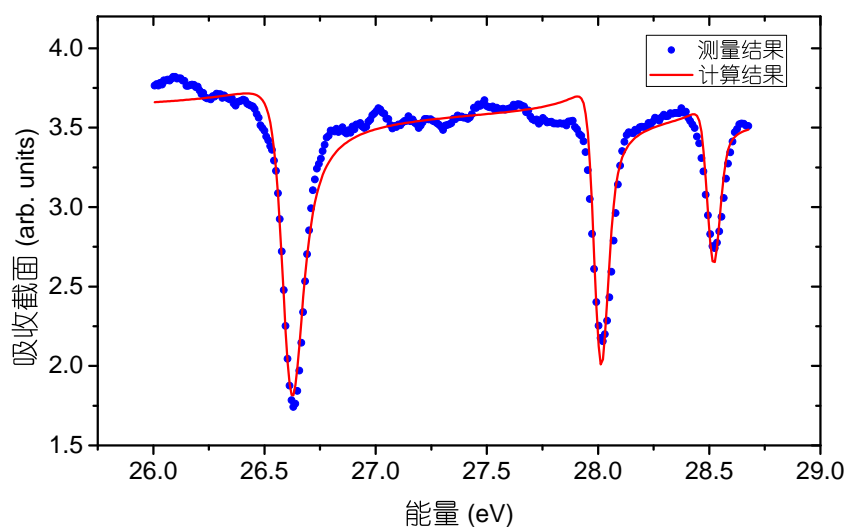


图 4.17 谱仪分辨率的确定

仪分辨率 60 meV 对应于荧光屏上 $190 \mu\text{m}$ 大小的光斑。可以看出它和量子噪声光斑大小非常接近，因此我们谱仪的分辨率主要是受 MCP 的限制。

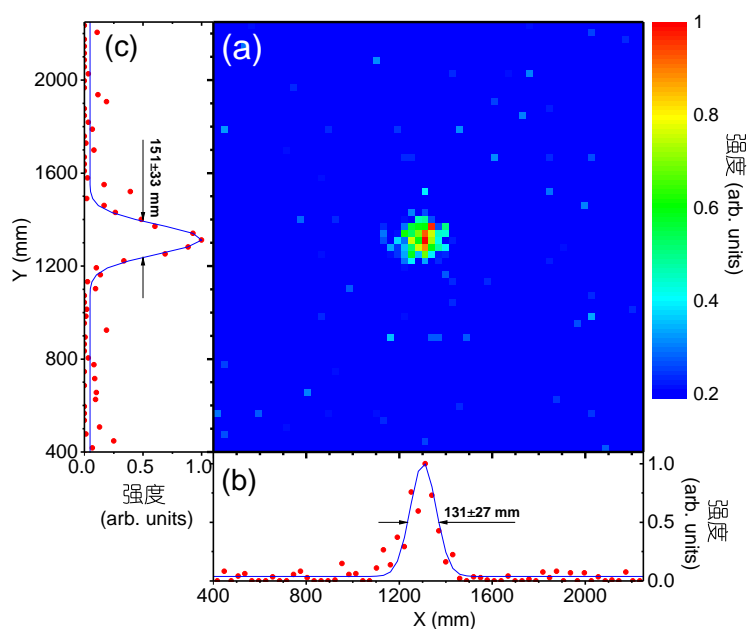


图 4.18 MCP 的量子噪声: (a) MCP 量子噪声在 CCD 上的像; (b) 量子噪声的横向分布 (圆点) 及其高斯拟合曲线 (实线); (c) 量子噪声的纵向分布 (圆点) 及其高斯拟合曲线 (实线)

4.4 阿秒瞬态吸收光谱的基本理论

4.4.1 吸收谱的计算

在阿秒脉冲出现之初，人们多利用它来研究原子分子体系产生的带电粒子碎片在外场中的能量谱，如阿秒条纹相机技术等。近年来，阿秒瞬态吸收光谱技术已被成功用来对多种体系内电子动力学的超快过程进行测量，这也逐渐把理论学者的注意力转移到体系的光学响应上来。然而，研究时间分辨的吸收谱要远比强场中的带电粒子谱更具有挑战性。在条纹相机等相似技术中，自由电子在激光场中的演化可由半经典模型来描述。相比之下，吸收谱的计算却要求求解在外场存在时体系电子波函数随时间的演化。目前，虽然并没有针对阿秒瞬态吸收光谱技术的通用理论方法，但在特定的近似及简化下，人们已能解释许多原子分子体系瞬态吸收光谱的实验结果。

为了计算吸收谱，我们首选需要计算单原子的吸收截面。通过在时频域上对原子与光场的相互作用的过程进行分析，可推导出单原子吸收截面为^[26]：

$$\sigma(\omega) = \frac{8\pi\omega}{c} \mathbf{Im} \left[\frac{\tilde{P}(\omega)}{\tilde{E}_{in}(\omega)} \right] \quad (4.10)$$

式中 $\tilde{P}(\omega)$ 是原子极化率， $\tilde{E}_{in}(\omega) = E_X(\omega) + E_L(\omega)$ 是入射阿秒脉冲光谱 $E_X(\omega)$ 及飞秒脉冲光谱 $E_L(\omega)$ 之和。 \mathbf{Im} 表示对复变量取虚部。式 (4.10) 只是考虑的单个原子对阿秒脉冲的吸收，要计算介质的宏观吸收谱，必须要以单个原子的极化率为辐射源求解光波在介质中传播的麦克斯韦方程组。这种计算要求巨大的计算量，通常人们忽略光波在传播过程中由介质引起的色散及其他非线性效应，此时经过气体池之后出射的光谱强度 $I_{out}(\omega)$ 可简单地由朗伯-比尔定律给出：

$$I_{out}(\omega) = I_{in}(\omega) e^{-\frac{8\pi\omega}{c} \mathbf{Im} \left[\frac{\tilde{P}(\omega)}{\tilde{E}_{in}(\omega)} \right] NL} \quad (4.11)$$

其中 $I_{in} = |\tilde{E}_{in}(\omega)|^2$ 为入射光的光谱强度。 NL 为气体密度-长度积。通常在实验中用吸光度 $A(\omega)$ 来描述气体对阿秒脉冲的吸收，其定义如下：

$$\begin{aligned} A(\omega) &= -\ln \left[\frac{I_{out}(\omega)}{I_{in}(\omega)} \right] \\ &= \frac{8\pi\omega}{c} \mathbf{Im} \left[\frac{\tilde{P}(\omega)}{\tilde{E}_{in}(\omega)} \right] NL \end{aligned} \quad (4.12)$$

因此，只要求出原子极化率 $\tilde{P}(\omega)$ 便能得到出射光谱或者吸光度。

设任意时刻原子波函数为 $|\Psi\rangle$ ，则原子极化率随时间的变化为：

$$P(t) = \langle \Psi | z | \Psi \rangle \quad (4.13)$$

对上式作傅里叶换可得到它在频域上的表述为：

$$\tilde{P}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} P(t)e^{-j\omega t} dt \quad (4.14)$$

所以对吸收谱的计算关键在于求解原子或者分子体系在阿秒脉冲电场 $\vec{F}_x(t)$ 及飞秒脉冲电场 $\vec{F}_L(t)$ 共同作用下波函数随时间的演化，也就是求解系统的含时薛定谔方程：

$$i\frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle = [H_0 - \vec{r} \cdot \vec{F}_x(t - \tau_d) - \vec{r} \cdot \vec{F}_L(t)] |\Psi\rangle \quad (4.15)$$

式中等号右边的 H_0 是无外场存在时系统的哈密顿量，后两项描述的是体系分别与阿秒脉冲及红外飞秒脉冲的相互作用。对于氢原子，上式是可以精确求解的。但对于含有更多电子的体系，必须借助于各种近似方法，比如单电子近似下的从头计算法等。这种全量子理论的计算通常需要复杂的数值方法来完成，并且计算量大，耗费时间长，很多研究小组并不具备这样的能力。为了便于理解并简化计算，我们在下节介绍一种基于简单体系的瞬态吸收谱计算方法^[27]，它可以对氢原子瞬态吸收光谱的各种特性进行十分准确的计算^[23]。

4.4.2 波函数的基矢展开算法

在实验中，阿秒脉冲及飞秒脉冲一般都是线性偏振的，式 (4.15) 可以简化为：

$$i\frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle = [H_0 - zF_x(t - \tau_d) - zF_L(t)] |\Psi\rangle \quad (4.16)$$

我们对波函数 $|\Psi\rangle$ 作如下的展开：

$$|\Psi\rangle = \sum_j c_j(t) |j\rangle \quad (4.17)$$

式中 $|j\rangle$ 是 H_0 的本征函数，即满足 $H_0 |j\rangle = E_j |j\rangle$ 。 $c_j(t)$ 为其对应的展开系数。把式 (4.17) 代入式 (4.13)，可得极化率为：

$$P(t) = \sum_{j,k} c_j^*(t) c_k(t) d_{jk} \quad (4.18)$$

其中 $d_{jk} = \langle j|z|k\rangle$ ，为体系在无外场作用下的从 $|i\rangle$ 态到 $|j\rangle$ 态的电偶极矩阵元。 d_{jk} 的计算相对比较容易，而且有些体系的电偶极矩阵元已被人们公开发表，不妨把它当作已知量。因此，计算极化率的关键是求解展开系数 $c_j(t)$ 。

把式 (4.17) 代入式 (4.16)，有：

$$i\frac{\partial}{\partial t} \left[\sum_j c_j(t) |j\rangle \right] = [E_j - zF_x(t - \tau_d) - zF_L(t)] \sum_j c_j(t) |j\rangle \quad (4.19)$$

用 $\langle k|$ 左乘上式两端，并利用正交关系 $\langle m|n\rangle = \delta_{m,n}$ 可得：

$$i\frac{\partial}{\partial t}c_k(t) = E_k c_k(t) - \sum_{j \neq k} [d_{jk} [F_X(t - \tau_d) + F_L(t)] c_j(t)] \quad (4.20)$$

上式是关于展开系数 $c_j(t)$ 的耦合方程组。若知道系统的本征能量 E_k 、电偶极矩矩阵元 d_{jk} 、阿秒脉冲电场 $F_X(t)$ 和飞秒脉冲电场 $F_L(t)$ ，便能对上式进行数值求解。其初始条件是系统处于基态，即：

$$c_j(0) = \begin{cases} 1 & j = 0 \\ 0 & j \neq 0 \end{cases} \quad (4.21)$$

通过把波函数以 H_0 的本征函数为基函数进行展开，我们能将求解含时薛定谔方程问题简化为求解关于展开系数 $c_j(t)$ 的耦合方程组问题。这个方程组可以通过四阶龙格-库塔方法进行数值求解，从而大大降低了运算量。但运用该方法有如下几个限制：第一，体系的本征能量及电偶极矩矩阵元必须为已知量；第二，瞬态吸收实验涉及到的能态数目必须有限，这也意味该方法并不能正确处理有无数连续态参与的情况。尽管如此，很多已报道的阿秒瞬态吸收过程可以简化为三能级系统的相互作用^[2, 28]。

4.4.3 三能级系统的瞬态吸收光谱

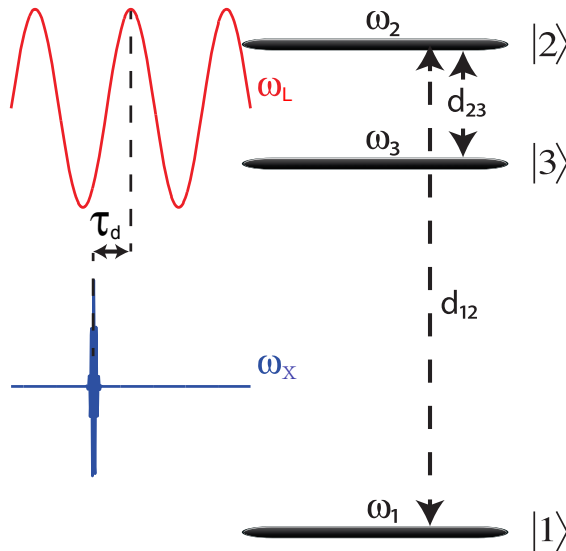


图 4.19 氙原子的三能级系统瞬态吸收模型^[27]

本节我们给出一个三能级系统瞬态吸收实验的简单算例^[27]。图4.19所示的是氙气的基态 $|1\rangle$ ($1S_0$) 及两个激发态 $|2\rangle$ ($4d^{-1}(^2D_{5/2})6p(^2P_{3/2})$) 和 $|3\rangle$ ($4d^{-1}(^2D_{5/2})6s(^2S_{1/2})$)

的能级示意图。其中三个能级的能量分别为 $\omega_1 = 0$ 、 $\omega_2 = 65.11$ eV 和 $\omega_3 = 63.73$ eV；电偶极矩阵元 $d_{12} = 0.02$ 、 $d_{23} = 2.7$ 。注意到基态 $|1\rangle$ 和激发态 $|3\rangle$ 都是 s 态，二者之间的跃迁是禁戒的。

利用上述三能级系统，我们考察这样一个物理过程：首先一束阿秒脉冲光束通过单光子吸收过程把电子从基态 $|1\rangle$ 激发至态 $|2\rangle$ 。然后，一定延时 τ_0 之后另一束中心波长为 800 nm 的飞秒激光将引起态 $|2\rangle$ 和态 $|3\rangle$ 之间的电子跃迁，从而改变系统对阿秒脉冲的吸收谱。由式 (4.20)，我们可以得到展开系数 $c_j(t)$ 满足如下方程组：

$$\begin{cases} \dot{c}_1(t) = -d_{12} [F_X(t - \tau) + F_L(t)] c_2(t) \\ \dot{c}_2(t) = \omega_2 c_2(t) - d_{12} [F_X(t - \tau) + F_L(t)] c_2(t) - d_{23} [F_X(t - \tau) + F_L(t)] c_3(t) \\ \dot{c}_3(t) = \omega_3 c_3(t) - d_{23} [F_X(t - \tau) + F_L(t)] c_2(t) \end{cases} \quad (4.22)$$

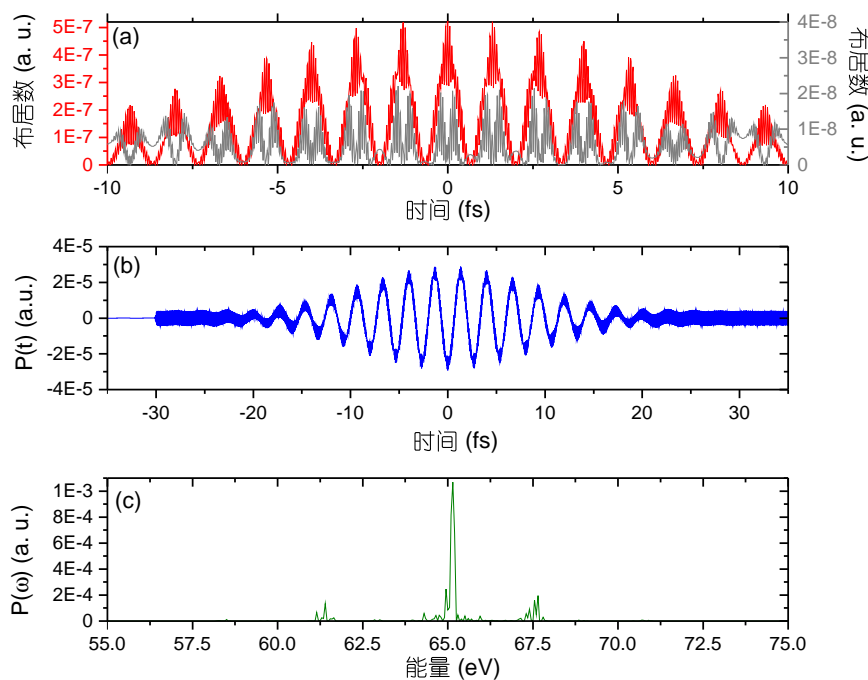


图 4.20 延时为 -30 fs 时耦合方程的解：(a) 态 $|2\rangle$ (深色实线，左轴) 和态 $|3\rangle$ (浅色实线，右轴) 的布居数随时间的变化；(b) 原子极化率随时间的变化 $P(t)$ ；(c) 原子极化率的频谱强度 $|P(\omega)|^2$

设阿秒脉冲和飞秒激光脉冲均为高斯电场。其中阿秒脉冲的强度为 1×10^{11} W/cm²、中心能量为 65 eV、脉冲长度为 100 as；飞秒激光场度为 2×10^{14} W/cm²、中心波长为 800 nm (光子能量为 1.55 eV)、脉冲长度为 15 fs。我们用四阶龙格-库格方法对式 (4.22) 进行数值求解。求解过程的步长为 1 as，时间窗口为 -50–50 fs。当阿秒脉冲与飞秒脉冲的相对延时为 -30 fs 时 (延时为负值表示阿秒脉冲在前)，得

到的能级 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 的布居数随时间的变化如图4.20 (a) 所示。其中能级 $|2\rangle$ (深色实线) 的布居数要比 $|3\rangle$ (浅色实线) 高出近一个数量级, 这是因为能级 $|3\rangle$ 上的电子全都由能级 $|2\rangle$ 跃迁过去。从图中可以看出, 布居数随时间快速振荡, 其频率与阿秒脉冲载波频率相当, 这种振荡来自于电子对阿秒光子的吸收与发射。另一方面, 布居数变化有一个慢变的包络, 与红外激光载波频率相当, 对应于红外光子的吸收与发射。其中能级 $|2\rangle$ 的布居数以大概 2 倍激光频率振荡, 而能级 $|3\rangle$ 有着更高的振荡频率。图4.20 (b) 是由式 (4.18) 计算得到的原子极化率, 图 (c) 是对图 (b) 作傅里叶变换得到的频谱。中心 65.11 eV 的吸收峰对应于由激发态到能级 $|2\rangle$ 的跃迁。除此之外在 61.5 eV 和 67.5 eV 处也存在两个较弱的吸收峰。这表明激光改变了原子体系对阿秒脉冲的吸收。

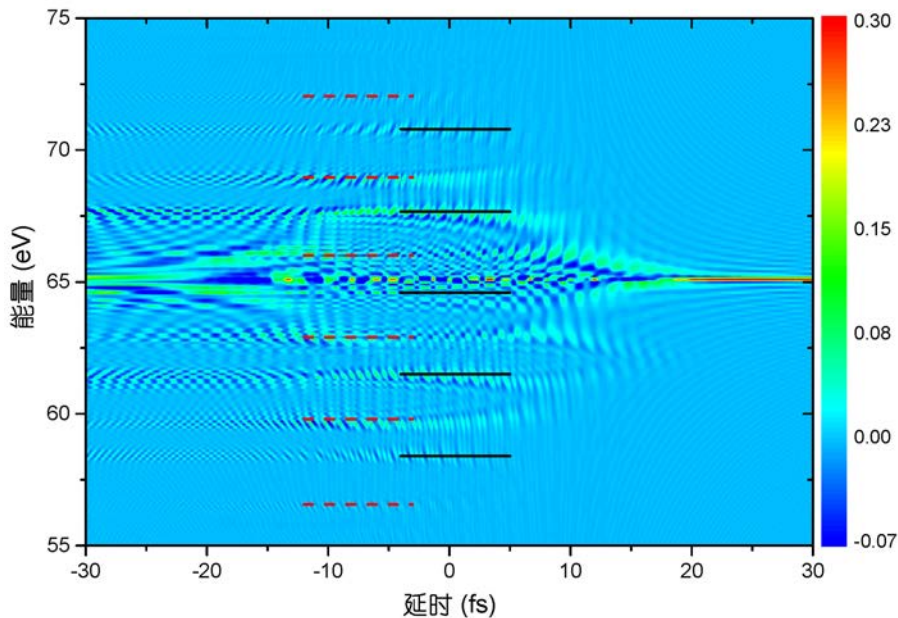


图 4.21 铯原子的三能级系统瞬态吸收谱随延时的改变

由式 (4.12) 便能从 $P(\omega)$ 求出原子对阿秒脉冲的吸光度。我们从 -30 fs 到 30 fs 以 100 as 为步长改变阿秒脉冲与飞秒脉冲相对延时, 得到的阿秒瞬态吸收光谱如图4.21所示。可以看到, 原子对阿秒脉冲的吸光度随延时的变化十分明显。在阿秒脉冲远远提前于飞秒脉冲时, 能级 $|2\rangle$ 的吸收谱被展宽, 并在较高能及较低能处都存在一些很弱的吸收结构。随着二者逐渐靠近, 能级 $|2\rangle$ 开始分裂。直到二者重合时, 已经几乎看不清能级 $|2\rangle$ 在吸收谱上的具体位置, 取而代之的是一系列相互间隔的能级。这些能级可以分成两套, 分别如图中虚线和实线所示。各虚线 (实线) 能级之间的能量差均为两个红外光子的能量。而实线与虚线之间的能量差为 1.38 eV, 这是能级 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 之间的能量差。而当阿秒脉冲落后于飞秒脉冲时,

吸收谱只在 65.11 eV 处有一个较窄的峰结构。表明此时只有从激态到 $|2\rangle$ 的跃迁，红外激光脉冲几乎不参与作用。关于这些能级的展宽、移动及分裂，我们会在后面几章的实验结果中看到类似的现象。

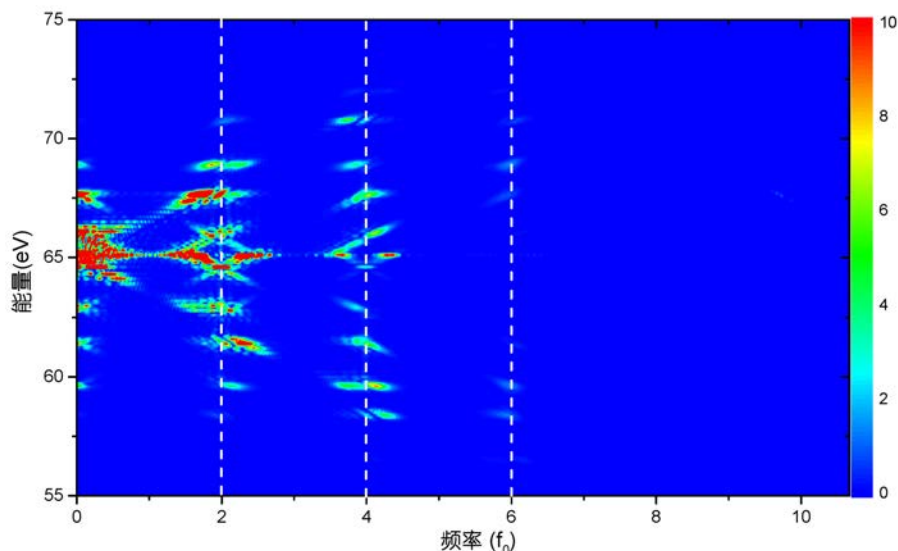


图 4.22 瞬态吸收谱振荡频率分析

在图4.21中，除了能级位置的变化，还有一个有趣的现象是吸收谱随着延时呈现出亚周期结构的振荡。为了更清晰地看清这些振荡的频率，我们把每个能量下吸光度随延时的变化作傅里叶变换，得到的结果如图4.22所示。其中横坐标为振荡频率，以红外激光振荡频率 f_0 为单位。可以看见，在某些能量处，吸收谱随延时以 2 倍、4 倍甚至 6 倍的激光频率振荡。能谱在亚周期时间尺度的变化是以前实验中不曾为人们所观测过的，但阿秒瞬态吸收光谱技术却为我们提供了一种观测的手段。

本章小结

本章介绍了利用单个阿秒脉冲进行电子超快动力学测量的阿秒瞬态吸收光谱技术，并详细介绍了其实验装置。在搭建实验装置的过程中，我们提出了一种高分辨率极紫外谱仪的设计方案，以及一种新颖的谱仪原位标定方法。最后，我们介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的理论处理方法，并求解了一个三能级系统的瞬态吸收谱。

参考文献

- [1] Goulielmakis E, Loh Z-H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. *Nature*. 2010, 466 (7307): 739–743.

-
-
- [2] Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon [J]. *Physical review letters*. 2010, 105 (14): 143002.
- [3] Holler M, Schapper F, Gallmann L, et al. Attosecond electron wave-packet interference observed by transient absorption [J]. *Physical review letters*. 2011, 106 (12): 123601.
- [4] Chen S, Bell M J, Beck A R, et al. Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (6): 063408.
- [5] <http://www.creol.ucf.edu/Research/DirectoryGroup.aspx?GrpID=510>.
- [6] Cheriaux G, Rousseau P, Salin F, et al. Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification [J]. *Optics letters*. 1996, 21 (6): 414–416.
- [7] Chini M, Mashiko H, Wang H, et al. Delay control in attosecond pump-probe experiments [J]. *Opt. Express*. 2009, 17 (24): 21459–21464.
- [8] Kita T, Harada T, Nakano N, et al. Mechanically ruled aberration-corrected concave gratings for a flat-field grazing-incidence spectrograph [J]. *Applied Optics*. 1983, 22 (4): 512–513.
- [9] <http://radiantzemax.com/>.
- [10] Loh Z-H, Khalil M, Correa R E, et al. A tabletop femtosecond time-resolved soft x-ray transient absorption spectrometer [J]. *Review of Scientific Instruments*. 2008, 79 (7): 073101–073101.
- [11] FieB M, Schultze M, Goulielmakis E, et al. Versatile apparatus for attosecond metrology and spectroscopy [J]. *Review of Scientific Instruments*. 2010, 81 (9): 093103–093103.
- [12] Farrell J, McFarland B, Bucksbaum P, et al. Calibration of a high harmonic spectrometer by laser induced plasma emission [J]. *Optics Express*. 2009, 17 (17): 15134–15144.
- [13] Nakano N, Kuroda H, Kita T, et al. Development of a flat-field grazing-incidence XUV spectrometer and its application in picosecond XUV spectroscopy [J]. *Applied optics*. 1984, 23 (14): 2386–2392.
- [14] Park J, Brown G, Schneider M, et al. Calibration of a flat field soft x-ray grating spectrometer for laser produced plasmas [J]. *Review of Scientific Instruments*. 2010, 81 (10): 10E319–10E319.

-
-
- [15] Blagojevic B, Le Bigot E-O, Fahy K, et al. A high efficiency ultrahigh vacuum compatible flat field spectrometer for extreme ultraviolet wavelengths [J]. *Review of scientific instruments*. 2005, 76 (8): 083102–083102.
- [16] Wang X, Chini M, Cheng Y, et al. In situ calibration of an extreme ultraviolet spectrometer for attosecond transient absorption experiments [J]. *Applied optics*. 2013, 52 (3): 323–329.
- [17] Žitnik M, Stanič A, Bučar K, et al. Lifetimes of n^1P states in helium [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2003, 36 (20): 4175–4189.
- [18] Chini M, Zhao B, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses [J]. *Physical Review Letters*. 2012, 109 (7): 073601.
- [19] Madden R, Ederer D, Codling K. Resonances in the Photo-ionization Continuum of Ar I (20-150 eV) [J]. *Physical Review*. 1969, 177 (1): 136.
- [20] Fano U. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts [J]. *Physical Review*. 1961, 124 (6): 1866–1878.
- [21] Liu X-j, Huang Y-p, Zhu L-f, et al. Numerical determination of profile parameters for fano resonance with definite energy resolution [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2003, 508 (3): 448–453.
- [22] Fang T, Chang T. Determination of profile parameters of a Fano resonance without an ultrahigh-energy resolution [J]. *Physical Review A*. 1998, 57 (6): 4407.
- [23] Chini M, Wang X, Cheng Y, et al. Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light [J]. *Scientific reports*. 2013, 3: 1105.
- [24] Drake G W. Springer handbook of atomic, molecular, and optical physics [M]. Springer, 2006.
- [25] Tremsin A, Siegmund O. Spatial distribution of electron cloud footprints from microchannel plates: Measurements and modeling [J]. *Review of scientific instruments*. 1999, 70 (8): 3282–3288.
- [26] Gaarde M B, Buth C, Tate J L, et al. Transient absorption and reshaping of ultrafast XUV light by laser-dressed helium [J]. *Physical Review A*. 2011, 83 (1): 013419.
- [27] Pfeiffer A N, Leone S R. Transmission of an isolated attosecond pulse in a strong-field dressed atom [J]. *Physical Review A*. 2012, 85 (5): 053422.

- [28] Chu W-C, Lin C. Absorption and emission of single attosecond light pulses in an autoionizing gaseous medium dressed by a time-delayed control field [J]. [Physical Review A](#). 2013, 87 (1): 013415.

第五章 氦原子中电子的亚周期动力学

本章中，我们将具有超快时间分辨的阿秒瞬态吸收光谱应用于最简单的气体原子—氦原子中。处于红外电场中的氦原子对阿秒脉冲（串）的吸收已被人进行过大量的理论研究^[1-5]。但它们都只集中一些特定的吸收结构上，如电磁诱导透明 (EIT)^[3]、瞬时交流斯塔克 (AC Stark) 效应^[5] 等，因而缺乏全面性。而阿秒瞬态吸收光谱技术的出现，允许我们同时对氦原子所有束缚态及电离阈附近的连续态进行测量。我们的结果展示了更多的超快动力学过程，增进了人们对微观世界的认识，同时也对阿秒瞬态吸收光谱的理论模型有着检验与促进作用。

5.1 氦原子的能级结构

氦原子的基态及束缚态能级结构如图5.1所示。图中给出了 $1sns$ 、 $1snp$ 以及 $1snd$ 等能级的相对位置。氦原子的基态为 $1s^2$ ，我们以它为能量的零点。第一激发态为 $1s2s$ ，能量为 20.6 eV，但由于跃迁选择定则的限制，这一能级并没有对应的吸收谱。能在吸收谱上被直接观测到的最低能级为 $1s2p$ ，能量为 21.22 eV。和 $1sns$ 能级一样， $1snd$ 能级也是不能在吸收谱上被直接观测的，但在红外激光的作用下， $1s2p$ 能级上的电子会向这两个能级跃迁，进而导致吸收谱的复杂变化。氦原子的电离能为 24.58 eV，图中阴影区域为电离阈上的连续态区。

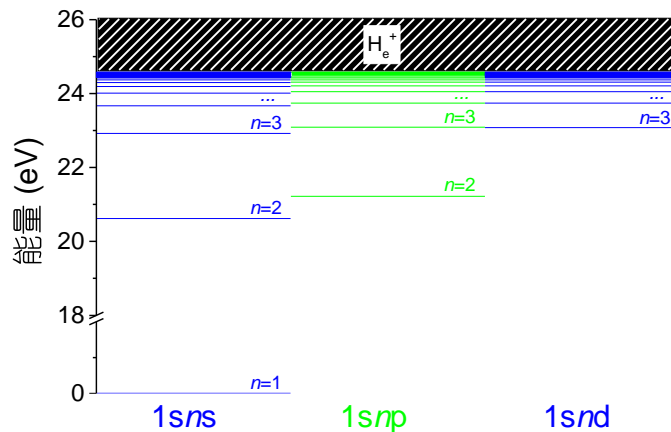


图 5.1 氦原子能级示意图

由于氦原子只含有两个电子，结构比较简单，理论上可以对这一体系的能级结构进行精确的计算^[6]。我们从中选出了一些束缚态能级的能量和电偶极矩矩阵元 $|d_{jk}|$ ，分别列在表5.1和表5.2中，以供我们在以后章节的讨论和计算中使用。其中，电偶极矩矩阵元由文献 [6] 中的振子强度 f_{jk} 计算而来，二者的关系为：
$$f_{jk} = \frac{2\omega_{jk}}{2} |d_{jk}|^2。$$

表 5.1 氦原子能级

电子组态	1s2s	1s2p	1s3s	1s3p	1s3d	1s4s	1s4p	1s4d	1s5s	1s5p
能量 (eV)	20.61	21.22	22.92	23.09	23.08	23.67	23.74	23.74	24.01	24.05
电子组态	1s5d	1s6s	1s6p	1s6d	1s7s	1s7p	1s7d	1s8l	1s9l	1s (He ⁺)
能量 (eV)	24.05	24.19	24.21	24.21	24.30	24.31	24.31	24.37	24.42	24.58

表 5.2 氦原子电偶极矩矩阵元 $|d_{jk}|$

s、d 态 \ p 态	p 态					
	1s2p	1s3p	1s4p	1s5p	1s6p	1s7p
1s ²	0.73	0.36	0.23	0.16	0.12	0.095
1s2s	4.97	1.57	0.79	0.51	0.36	0.28
1s3s	1.87	12.26	2.68	1.34	0.87	0.64
1s4s	0.66	4.61	24.16	4.01	2.02	1.3
1s3d	3.95	9.26	0.97	0.36	-	-
1s4d	1.39	6.38	16.92	2.27	-	-
1s5d	0.79	2.45	9.24	27.85	-	-
1s6d	0.54	1.43	3.65	13.07	-	-
1s7d	0.4	0.98	2.14	5.06	-	-
1s8d	0.3	0.74	1.48	2.97	-	-

5.2 氦原子的瞬态吸收光谱

5.2.1 实验条件

由表5.1可以看出, 氦原子在束缚态及电离阈附近的吸收谱主要集中在 20–30 eV 的能量范围内。因此, 用来产生单个阿秒的气体必须具有小于 20 eV 的电离阈值, 比如氙气 ($I_p=15.76$ eV)、氪气 ($I_p=14.00$ eV) 和氩气 ($I_p=12.13$ eV) 等。从产生单个阿秒的角度来看, 电离能最低的氩气更具有优势, 这是因为它的截止区也相应地更低, 更容易在 20–30 eV 的能量范围产生单个阿秒脉冲。我们分别以氙气和氩气为产生气体通过 GDOG 技术来产生单个阿秒脉冲, 经过 200 nm 铝膜之后的连续谱如图5.2所示。由于二者电离能差别很大, 实验时我们对这两种情况分别优化气压和入射光强, 所以图中所示的是这两种气的最优连续谱。图中浅色填充的实线是用氙气产生的连续谱, CCD 的积分时间为 2 秒; 实线是氩气产生的连续谱, CCD 的积分时间为 15 秒。可以看出二者的光谱范围都能覆盖氦气的所有能级, 但氩气的光谱强度要大大优于氙气。

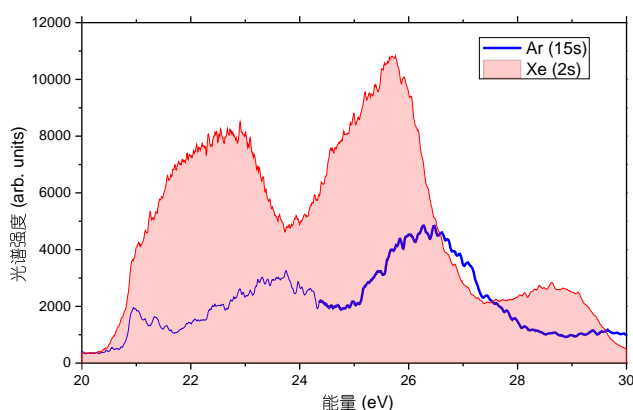


图 5.2 氙气（浅色填充实线）和氩气（实线）产生的连续谱的比较

经过空芯光纤的展宽及啁啾镜的压缩，我们能得到中心波长为 730 nm，脉冲长度为 ~ 6 fs 的超短脉冲。在 GDOG 方案中，取 $\varepsilon = 0.5$ ，即用两片布儒斯特窗来减小驱动电场。同时注意到我们产生的是低能区光子，不妨取偏振阈值 $\xi_{th} = 0.4$ 。这样，由式 (3.9) 可知第一个石片需要引入 2 个周期的延时，所需石英片的厚度约为 $160 \mu\text{m}$ 。第四章已经讨论过，第二块石英片和 BBO 的厚度固定为 $440 \mu\text{m}$ 和 $141 \mu\text{m}$ 。虽然中心波长发生了变化，但在实验中，我们可以通过调节 BBO 的角度来进行校正。实验中我们应用铝膜来滤除残留红外激光。

用于吸收实验的气体池内径约为 1 mm，前后小孔大小约为 $50 \mu\text{m}$ 。氦气的气压为 30–40 torr，吸收大约 40%–60% 的阿秒脉冲能量。实验中测得的连续谱及吸收谱如图 5.3 所示。光栅的色散沿 X 轴方向，左边为低能光谱，右边为高能光谱。其中图 (a) 是连续谱在 MCP 上的分布。图 (b) 是在吸收池里加入 40 torr 氦气之后的吸收谱，图中黑色的暗带对应氦气的吸收线，对应的能级分别标注在图 (a) 的上方横轴上。图 (b) 的吸收谱是在红外激光存在时的测得的，且阿秒脉冲相对于红外脉冲的延时为 -40 fs。图 (c) 是当阿秒脉冲与红外脉冲重合时，氦气的吸收谱。可以看出它与图 (b) 中的光谱有着明显的区别，总体吸收变强，但氦原子各能级的特征吸收峰已不再分明，表明氦原子的能级在外加激光场的作用下发生了变化。图 (d) 是二者延时为 40 fs 时的吸收谱。此时由于阿秒脉冲大大落后于红外飞秒脉冲，被阿秒脉冲激发的氦原子将几乎感受不到激光场的存在，因此，氦原子的特征吸收峰非常窄。同时在电离阈之下，氦原子对阿秒脉冲的吸收非常小；而且电离阈值处有着明显的吸收边，这与图 (b) 和图 (c) 中的吸收谱明显不同。

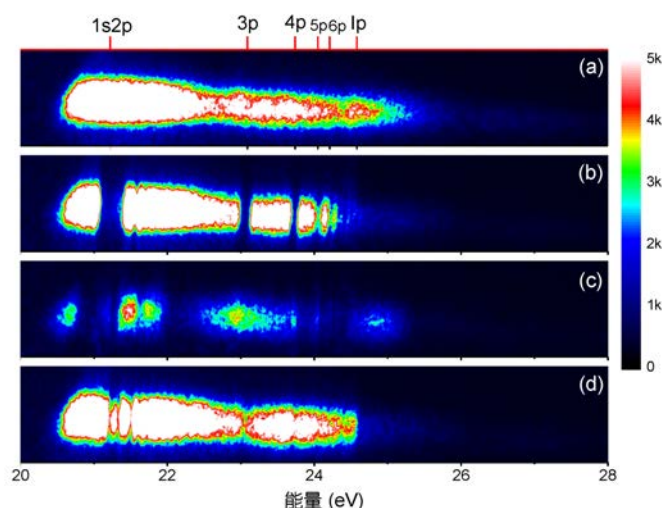


图 5.3 氩的吸收光谱: (a) 单个阿秒脉冲光谱; (b) 延迟为 -40 fs 时氩的吸收光谱; (c) 阿秒脉冲与红外激光脉冲重合时氩的吸收谱; (d) 延迟为 40 fs 时氩的吸收光谱

5.2.2 氩原子吸收谱随红外激光光强的变化

首先, 我们考察红外激光光强变化对氩原子吸收谱的影响。我们把阿秒脉冲与红外飞秒激光的相对延时锁定在 $\tau_d \approx 0$ 的位置 (即二者在时间上重合), 然后测量氩原子在 $20.5\text{--}26$ eV 的能量范围内的吸光度, 结果如图 5.4 所示。实验中红外激光强度由可变光阑控制, 并由焦点处的能量和测得的焦点大小计算得到。在吸收谱中, 氩原子各能级的吸光度随光强的增加而增加。不仅如此, 各能级的位置和光谱宽度也随光强的变化而改变。如 $1s3p$ 、 $1s4p$ 的能级以及电离域 I_p 的位置都随着红外激光光强的升高逐渐向高能移动, 并且大致呈线性增长的关系 (见图中白色虚线)。此外, $1s3p$ 能级的光谱宽度也有明显增加。束缚态能级的移动来源于交流斯塔克效应 (AC Stark Effect)^[7, 8], 而能级的展宽则是由于红外电场引起了束缚态电子之间的跃迁耦合或者电离了束缚态电子, 从而减小了束缚态能级的寿命。在外加电场下, 电离阈值由于有质动力能位移 (Ponderomotive Shift)^[9, 10] 效应而升高, 且原子电离能的增加量等于电子在外加电场中的有质动力能 U_p , 它与激光场的关系见式 (2.9)。 U_p 和光强呈线性关系, 与图中白色虚线一致。

图 5.4 证实了外加红外激光场对氩原子吸收谱的调控作用, 图中展示的氩原子吸收谱随延时的变化被理论所准确预言^[2]。除此之外, 在我们的实验结果中, $1s2p$ 能级除了位移和展宽, 还有着更细致的结构。另外, 在 $1s2p$ 和 $1s3p$ 能级间, 出现了新的吸收峰, 它们并不对应于任何氩原子能级。为了使电子跃迁至特定能级, 就必须有一定数目的红外光子也同时被吸收。这就涉及到阿秒-红外双色场多光子吸收过程。下文的实验结果将展现出更多的多光子吸收过程, 我们会对相应的吸收结构进行一一指认。

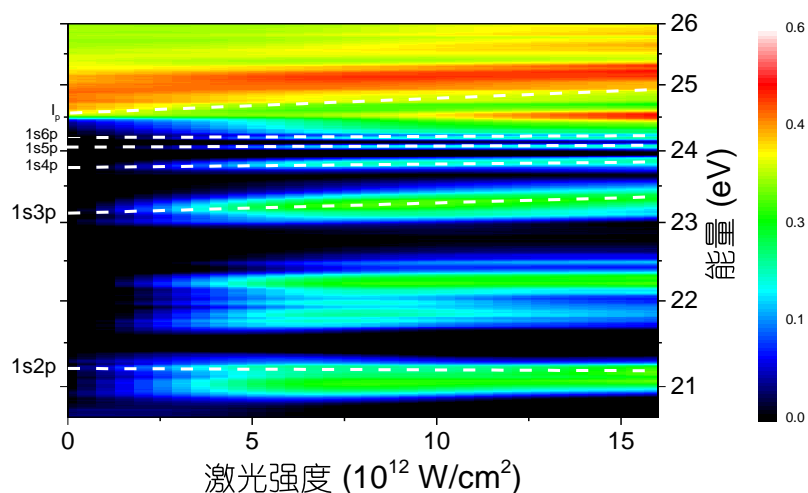


图 5.4 氦原子吸光度随激光强度的变化 (延时 $\tau_d \approx 0$)，白色虚线表明各能级随光强增加逐渐向高能移动

5.2.3 氦原子吸收谱随延时的变化

5.2.3.1 较弱光强下的吸收谱

通过扫描阿秒脉冲和飞秒脉冲的相对延时，我们能看清各个吸收谱结构的变化过程，从而对它们内在动力学过程进行分析。图5.5 (a) 和 (b) 分别是当红外激光脉冲强度为 $7 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 和 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时氦原子吸光度随延时的变化。实验中用绿光干涉法来锁定和扫描延时，扫描步长为 0.5 rad ，也即 141 as ，延时范围为 $-22-9 \text{ fs}$ 。我们测量了较多的负延时光谱，这是因为实验中使用的激光强度能引起激发态、电离态之间的跃迁，却并不足以激发基态原子，因此，激光对吸收谱的调制主要体现在原子被阿秒脉冲激发之后。实验中，我们只知道每步之间的延时改变量，并无法确定两束脉冲完全重合（零延时）的位置，因此，对时间轴原点的标定是通过对和理论结果对比得到的。

对比图 (a) 和图 (b)，可以看出较强的激光能增强氦子对阿秒脉冲的吸收。而且图 (b) 中各个束缚态的吸收峰十分明显，线宽也较大。这些都与图5.4一致。但通过延时扫描，我们发现 $1s2p$ 和 $1s3p$ 能级间的新吸收结构不仅在延时为零的时候存在，在较大的负延时处，它们仍然有着非常分明的吸收峰。它们在负延时处吸光度较弱且基本保持不变，当红外激光与阿秒脉冲时重合时急剧增强。通过把这些吸收峰的位置与氦原子的能级结构进行对比，我们可以找到各个吸收峰对应的跃迁路径，如图5.6 (a) 所示。图中左边红色实线表示吸收一个阿秒光子可以跃迁到的 p 态能级，靠右的实线分别表示 $3s$ 、 $3d$ 态能级。这些能级是跃迁禁戒

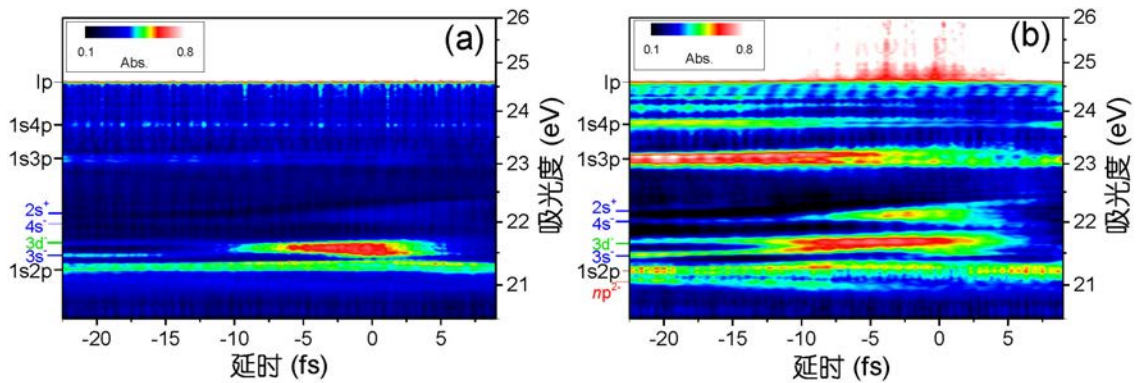


图 5.5 红外激光强度分别为 (a) $7 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 和 (b) $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时, 氦原子吸光度随延时的变化

的, 不能在阿秒吸收谱上直接观测到, 因此也称为暗态。图中的虚线能级或与 $3s$ 、 $3d$ 态能级相差一个光子能量, 或与较高层的 np 态相差 2 个光子的能量。这些与原子本征能级相差整数个光子能量的态称为相应本征能态的 Floquet 边带。它们涉及到激光光子参与的跃迁过程, 因此在其他文献^[11, 12] 中也被称为激光诱导态 (Light Induced States)。电子可以在红外电场的辅助下经由激光诱导态跃迁至它们对应的本征能级, 如图中箭头所示, 电子可以吸收一个阿秒光子和一个红外光子到达 $3s$ 、 $3d$ 态, 或者吸收一个阿秒光子加上两个红外光子到达 np 态, 从而导致吸收谱出现新的吸收结构。我们把它们标记为 $nl^{m\pm}$, 其中 nl 为电子最终到达的本征能级, m_{\pm} 为跃迁过程中辐射 (+) 或者吸收 (-) 的红外光子数目。实验中各个吸收结构的标注如图 5.5 所示。例如图 5.5 (a) 中的 $2s^+$ 表示电子会吸收一个该能量的阿秒光子并辐射一个红外光子, 最终到达 $1s2s$ 能级。当两束脉冲重合时, 在 21.6 eV 和 22.3 eV 处有两个很强的吸收峰, 它们分别是 $3s$ 、 $3d$ 能级的边带和 $2s$ 、 $4s$ 能级的边带。

以上关于能级边带的指认仅仅来自于吸收谱和氦原子能级结构的比对。我们也可以通理论计算对之进行确认。在图 5.7 (b) 和 (c) 中, 我们分别用非厄米 Floquet 理论^[13] 和第四章讨论的本征能级展开法对 $1s2p$ 能级附近的吸收截面进行了计算。计算中, 假设红外激光场的强度为 $7 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$, 光子能量为 1.7 eV , 并且阿秒脉冲与红外脉冲重合。其中图 (b) 中基于非厄米 Floquet 理论的计算由堪萨斯大学 Shih-I Chu 教授的研究小组完成。我们首选计算了体系中包含足够多的能级时的吸收截面, 如浅色填充实线所示, 可以发现除 $1s2p$ 能级之外, 还存在两个较小的吸收峰, 分别对应于 $3s^-$ 和 $3d^-$ 边带, 这和我们的实验结果一致。为了确认这些边带的来源, 我们在计算中人为去除相应的暗态, 比如去除 $1s3d$ 能级后吸收截面中的 $3d^-$ 边带消失 (实线), 而同时去除两个暗态后它们对应的边带都全部消失 (虚线)。这证明了对边带能级指认的正确性。由于 Floquet 理论假

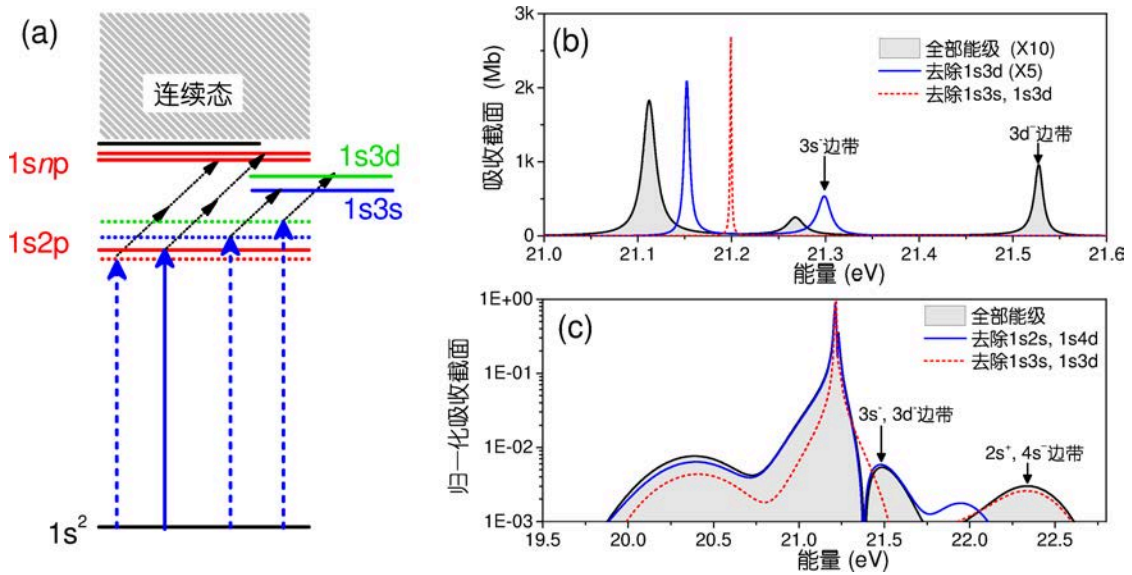


图 5.6 氖原子 Floquet 连带能级的指认。(a) 经由 Floquet 边带的电子跃迁。：(b) 非厄米 Floquet 理论^[13] (由 D. Zhao, D. A. Telnov 及 S. I. Chu 等人计算) 得到的氖原子吸收截面, (c) 求解式 (4.20) 的耦合方程得到的氖原子吸收截面^[14]。

设外加电场是单色场 (连续波), 所以计算得到的各个吸收峰都非常窄。在图 (c) 的计算中, 我们用龙格-库塔法求解式 (4.20) 的耦合方程组, 其中用于展开波函数的本征能级见表 5.2。红外激光场为 6 fs 的傅叶变换极限的高斯脉冲, 其光子能量是以 1.7 eV 为中心, 以 0.3 eV 为半高宽的高斯分布。因此 $3s^-$ 和 $3d^-$ 边带将重合在一起形成一个较宽的边带。同理, $2s^+$ 和 $4s^-$ 能级也会重合。与图 (b) 的计算一样, 移除特定的本征态将会同时导致其对应的边带的消失。

此外, 当阿秒脉冲和红外激光脉冲重合时, Floquet 边带能级的吸光度随着延时的变化还存在着亚周期结构的振荡。为了看得更加清晰, 我们给出了 Floquet 边带的吸光度随延时的变化曲线, 如图 5.7 (a) 所示。其中带实心圆点的实线为 $2s^+$ 、 $4s^-$ 边带的吸光谱随延时的变化, 空心圆点实线对应 $3s^-$ 、 $3d^-$ 边带, 这两条曲线的振荡周期均为激光周期的一半。而 np^{2-} 边带的吸光度 (带空心方块点的实线) 振荡周期为激光周期的 $\frac{1}{4}$ 。吸光度随延时的周期改变本质上是由量子干涉引起的, 我们会在下文中详细解释。

通过对吸光度随延时的变化做傅里叶分析, 我们能得到各个能级处半周期和 $\frac{1}{4}$ 周期振荡分量的振幅强度。图 5.7 (b) 和 (c) 分别是对图 5.5 (b) 的吸收谱作傅里变换得到的半周期和 $\frac{1}{4}$ 周期频谱分量的振幅。这样的频谱分析进一步验证了各吸收边带的振荡周期的确是激光周期的一半或者 $\frac{1}{4}$ 。此外, 在半周期频谱图上, 只存在吸收单个红外光子的边带, 而在 $\frac{1}{4}$ 周期频谱图上, 只存在吸收两个

红外光子的边带。其中 $1/4$ 周期的振荡结构是迄今为止，人们观测到的最快的动力性特性。

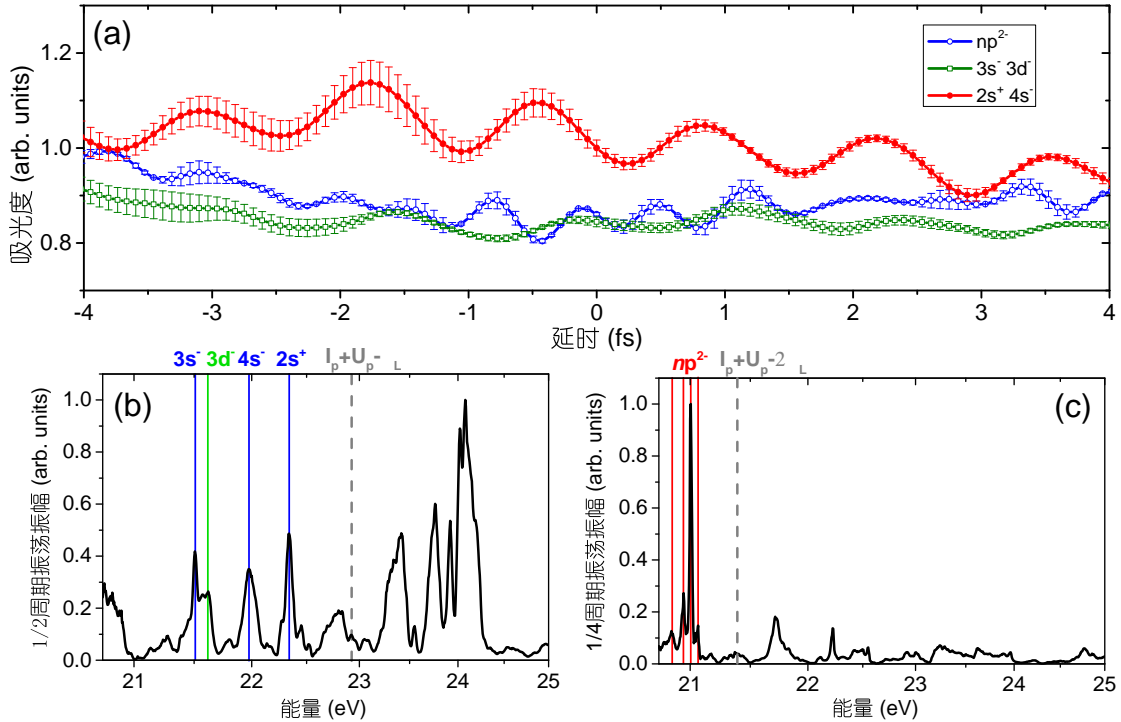


图 5.7 (a) Floquet 边带随延时的亚周期振荡；(b) 各吸收峰的半周期振荡振幅；(c) 各吸收峰的 $1/4$ 周期振荡振幅

5.2.3.2 较强光强下的吸收谱

我们将激光光强增加到 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ，得到的氦原子吸光度随延时的变化如图 5.8 (a) 和 (b) 所示。这两组数据是在完全相同的实验条件下测得，只是谱仪的测量范围不同。测量图 (a) 的光谱时，谱仪按 4.3 节的参数摆放，有效观察范围为 $19.6\text{--}28 \text{ eV}$ 。测量图 (b) 时，我们适当增大入射角，以探测更多低能区光谱，测量范围为 $18.2\text{--}25.3 \text{ eV}$ 。

与图 5.5 相比，在红外激光强度较高时，氦原子吸收谱展现出更加复杂的变化。首先，与低光强吸收谱一样，我们观察到了很多暗态的 Floquet 边带能级，但此时这些能级表现出更加明显的亚周期振荡。其次氦原子的 p 态能级的位置、宽度及吸光度被激光改变。如 $1s2p$ 能级在延时趋于 0 的过程中逐渐分裂开来；而 $1s3p$ 、 $1s4p$ 等较高层的 p 态能级受 AC Stark 效应的影响而向高能区移动，不仅如此，它们的吸光度也具有半周期振荡特性。再次，当两束脉冲延时为负时，氦原子并没有分明的电离域值，取而代之的是一系列周期变化的双曲线形状的干涉条纹。这些条纹在 19 eV 左右的低能区也能被观察到。最后在两束脉冲重合时，电离能的

有质动力位移也随延时的变化而表现出半周期的振荡。我们将在下文对这些现象进行详细讨论。

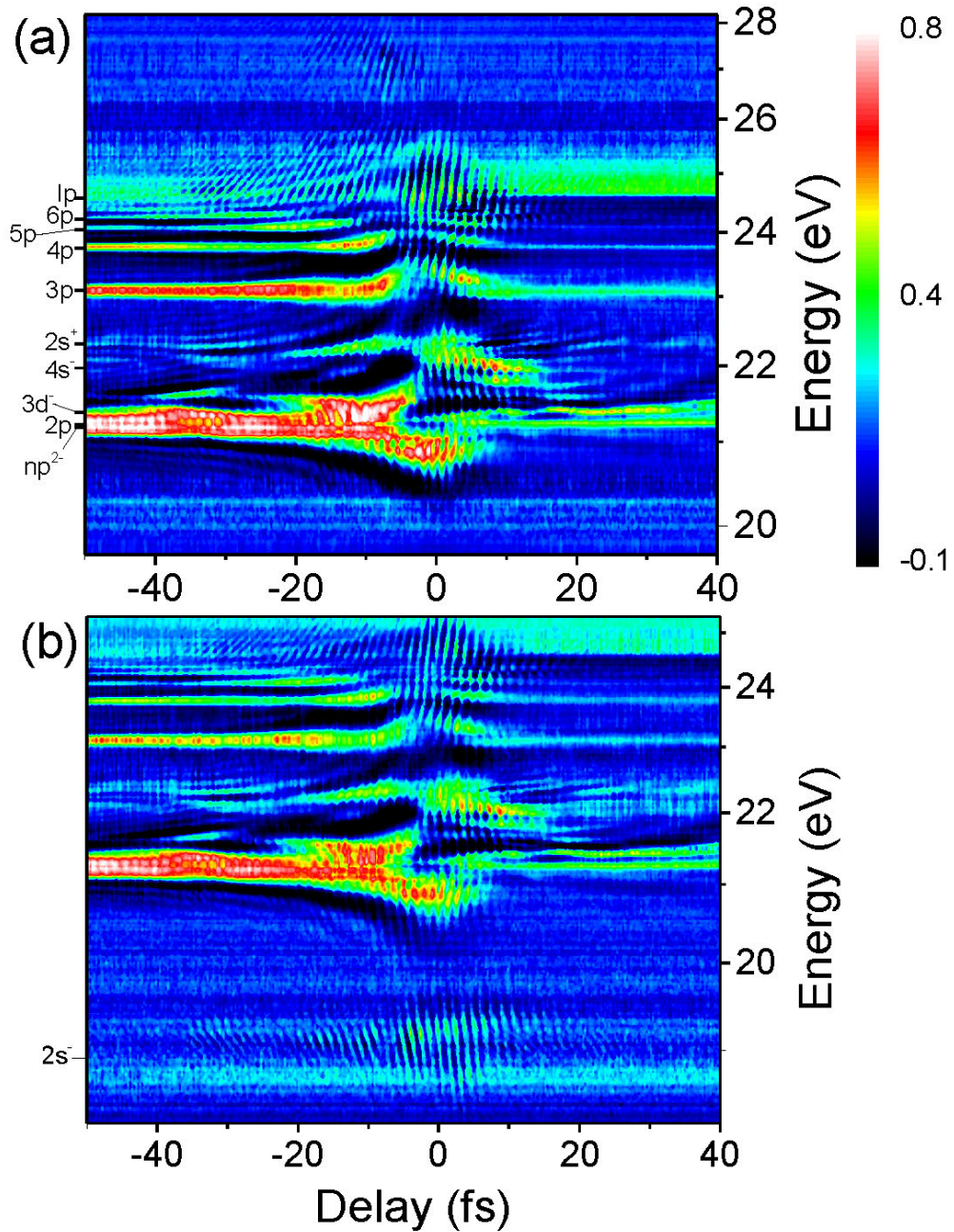


图 5.8 氩的吸光度随延时的变化 ($I_L = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$): (a) 能量范围 19.6–28 eV; (b) 能量范围 18.2–25.3 eV

5.3 瞬态吸收光谱的计算

以表5.2中所列能级的波函数为基矢，可以对原子波函数进行展开，则展开系数会满足耦合方程 (4.20)。我们用到的一共有 16 个能级，因此会得到一个 16 维的微分方程组。对之进行数值求解的计算量并不太大，一台普通计算机在几个小时内就能完成。设阿秒脉冲的中心能量为 22.5 eV，脉冲长度为 100 as；飞秒激光中心波长为 730 nm，脉冲长度为 6 fs，光强为 1×10^{13} W/cm²。计算得到的氦原子瞬态吸收光谱如图 5.9 (a) 所示。图中的吸收光谱与实验结果非常一致。尤其是 1s2p 能级，我们的计算几乎再现了实验结果的所有细节。但在高激发态和电离域附近，我们的计算并不十分准确，这是因为计算中考虑的能级数目太少。实际上在电离域附近有着无穷能量相差很小的高激发态，它们都能通过红外光子与其他能级耦合，影响最后的吸收谱。图 (b) 是 Chen 等人^[12] 在单电子近似下直接求解含时薛定谔方程得到吸收谱。他们在计算中使用的红外激光强度为 3×10^{12} W/cm²，中心波长为 800 nm，脉冲长度约为 10 fs，其激光电场随时间的分布如图中黑色实线所示。由于不用做基矢展开，他们的计算可以包含足够多的能级，因此，高激发态及电离态的吸收谱都能较为准确地被计算结果重现。图 (b) 并没有给出 19 eV 附近的吸收谱。关于这部分光谱，图 (a) 中的计算已经足够准确，这是因为通过吸两个以下的光子，19 eV 附近的吸收结构只能和 23 eV 以下的能级产生耦合，我们的基矢已经包含了这部分能级。

注意到图 5.9 中的计算结果都只包含了单原子响应。Chen 等人^[11] 通过联合求解麦克斯韦方程和含时薛定谔方程以考虑脉冲在介质中传播的影响，结果表明，介质的传播效应对吸收谱的影响十分微小，因而只计算单原子响应已经足够准确。

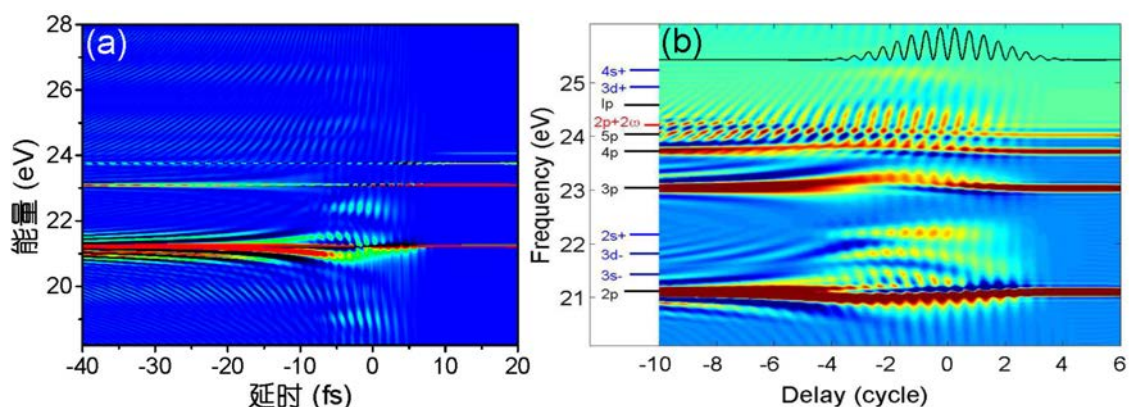


图 5.9 氦原子瞬态吸收光谱的计算：(a) 求解式 (4.20) 的耦合方程组^[14]；(b) 直接求解含时薛定谔方程^[12]

5.4 氦原子瞬态吸收光谱动力学过程分析

上两节中，我们测得了氦原子的瞬态吸收光谱随延时的改变，并且从理论上计算得到了和实验结果非常一致瞬态吸收光谱。本节我们将就瞬态吸收光谱所反映出的超快动力学过程进行具体分析。

5.4.1 亚周期交流斯塔克效应

在图5.8中，1s3p、1s4p能级的上移是由于斯塔克效应引起的。根据现有理论，外加恒电场会改变系统的能级，且能级的改变量 δE_n 为^[8]：

$$\delta E_n = \sum_{m \neq n} \frac{|d_{mn}F|^2}{E_n - E_m} \quad (5.1)$$

式中 F 为外加电场的场强， E_n 、 E_m 为原子本征能级， d_{mn} 为电偶极矩矩阵元。由于外加电场不随时间改变，式 (5.1) 被称为直流斯塔克效应 (DC Stark Shift)。当但外加的是激光场 (交变电场) 时，原子的能级会发生改变，形成所谓的准能级 $E_n + k\omega_L$ ^[15]。式中 k 取整数， ω_L 为激光频率。当激光很弱时，通常只考虑一阶效应，即 $k = \pm 1$ 。此时式 (5.1) 变为：

$$\begin{aligned} \delta E_n &= \sum_{m \neq n} \left| \frac{d_{mn}F(t)}{2} \right|^2 \left(\frac{1}{E_n - E_m - \omega_L} + \frac{1}{E_n - E_m + \omega_L} \right) \\ &= |F(t)|^2 \sum_m \frac{\omega_{nm} |d_{nm}|^2}{\omega_{nm}^2 - \omega_L^2} \end{aligned} \quad (5.2)$$

式中 $F(t) = F_0(t) \cos(\omega_L t)$ 为激光场瞬时电场， $\omega_{nm} = E_n - E_m$ 为能级 m 和 n 之间的共振频率。利用动态极化率

$$\alpha_n(\omega_L) = \sum_{m \neq n} \frac{\omega_{mn} |d_{nm}|^2}{\omega_{mn}^2 - \omega_L^2} \quad (5.3)$$

式 (5.2) 可化为：

$$\delta E_n = -I(t) \alpha_n \cos^2(\omega_L t) \quad (5.4)$$

式中 $I(t) = F_0^2(t)$ 为激光脉冲的光强。上式也可以由二阶微扰理论更加严格地导出^[6, 7]。式 (5.4) 所给出的能级变化是一个随时间以 2 倍激光频率快速振荡的量。但由于原子能级的改变需要一定的响应时间且早期的实验条件不可能观察到这样

快速的能级移动，因此人们对快速振荡项做周期平均，并把平均后的能级改变量称为交流斯塔克位移，即：

$$\begin{aligned}\overline{\delta E_n} &= -F_0(t)^2 \alpha_n \langle \cos^2(\omega_L t) \rangle \\ &= -\frac{1}{2} I(t) \alpha_n\end{aligned}\quad (5.5)$$

式 (5.5) 表明能级的 AC Stark 位移正比于激光脉冲的光强。这个结论早已被实验证实^[16]，并被人们广泛认可。在单个阿秒脉冲被应用于超快动力学探测之前，人们利用飞秒泵浦-探测技术以 10 fs 的超短时间分辨率测量过交流斯塔克效应^[17, 18]。但这样的时间分辨率仍然远远大于激光周期，因此，他们也只能测量到周期平均的斯塔克位移。因此人们一直不能确定式 (5.4) 所描述的亚周期交流斯塔克效应是否真实存在。直到 2012 年，Chini 等人^[7]才首次在氦气的阿秒瞬态吸收光谱实验中观察到了亚周期斯塔克效应。

在图 5.8 的瞬态吸收光谱中，时间步长为 141 as，比激光周期小近 20 倍，完全能够分辨亚周期时间尺度内能级的变化。下面，我们集中讨论 1s3p、1s4p 能级在零延时附近的瞬态吸收谱，如图 5.10 (a)。可以看到受交流斯塔克效应的影响，两个能级的位置明显向高能区移动，并且随延时变化，大体上与激光包络一致。其中，1s3p 能级的最大改变约为 0.5 eV，而 1s4p 的能级位移最大约为 0.25 eV。除此之外，这两个能级的吸光度随着延时振荡，周期约为 1.25 fs，大概是激光光学周期的一半，如图 (b) 和 (c) 所示。同样的吸光度调制在其他的瞬态吸收实验中也观察到过^[19]。

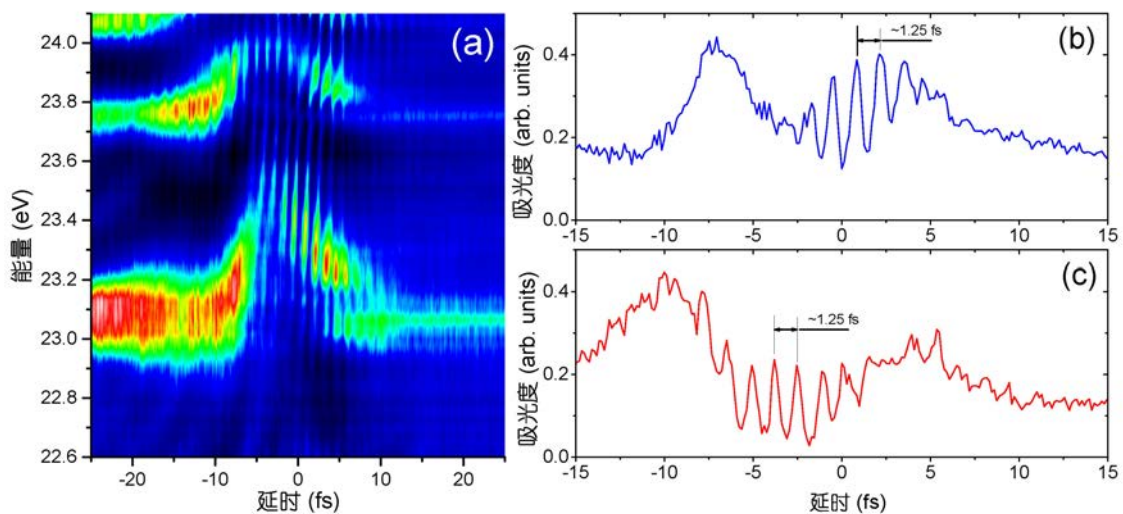


图 5.10 1s3p 和 1s4p 能级的交流斯塔克效应：(a) 1s3p 和 1s4p 能级的瞬态吸收谱；(b) 1s3p 能级的吸光度随延时的变化；(c) 1s4p 能级的吸光度随延时的变化

吸光度的半周期调制使发生位移之后的能级位置变得不直观，为了看清能级的交流斯塔克位移随延时的变化，我们将 $1s3p$ 和 $1s4p$ 能级分开，并对吸光度在每一个延时下分别归一化，结果分别如图5.11 (a) 和 (b) 所示。图中白色的部分是各自延时下的吸收峰的峰值位置，它直接反映了受交流斯塔克效应影响之后的能级位置。 $1s3p$ 能级从延时为 ~ -8 fs 开始向上偏移，在 -6 – 6 fs 的延时区间内有着明显的半周期振荡结构，在 8 fs 延时之后稳定在本征能级的位置。同样地，在 $1s4p$ 的能级中我们也能看到能级的亚周期交流斯塔克位移。这表明原子体系的能级在外场作用下发生变化所需的时间小于半个激光周期，因此在时间分辨率足够高的情况下，对能级的斯塔克位移进行周期平均是不必要的。

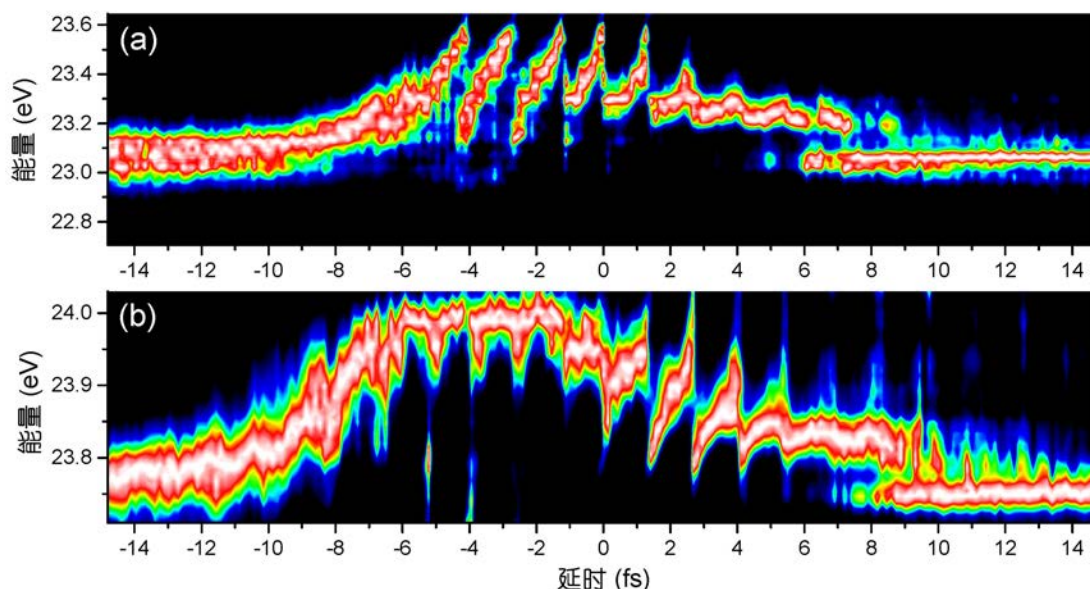


图 5.11 (a) $1s3p$ 和 (b) $1s4p$ 能级位置的亚周期改变

图5.11中，尽管 $1s3p$ 和 $1s4p$ 的能级位置有着半周期的调制，但与式 (5.4) 相比，实验数据的调制并不十分明显。这是因为阿秒瞬态吸收光谱实验测量的并不是原子体系的瞬时能级。光谱信号本质上是原子极化率在一定时间尺度（极化率衰减所需时间长度）内积分的结果。这种积分不可避免地会将能级的周期变化进行平均，从而减小甚至完全淹没掉能级随延时的周期变化。而我们的实验之所以能看到这种半周期调制，是因为红外激光脉冲长度极短，能将 $1s3p$ 和 $1s4p$ 能级上的电子迅速电离掉，大大减小了极化率的衰减时间，从而把积分限制很小的时间窗口内。Chini^[7, 14] 和 Chen 等人^[12] 的计算证实了这种快速电离在观察亚周期交流斯塔克效应中的必要性。

5.4.2 共振耦合

1s3p 及 1s4p 能级的交流斯塔克效应是由激光频率远离共振频率引起的。当共振频率接近激光频率 ($\omega_{mn} \approx \omega_L$) 时, 式 (5.4) 便不再适用。氦原子中 1s2p 能级与 1s3d、1s3s 能级的能量分别差为 1.7 eV 和 1.86 eV, 1s2p 能级可以通过单光子吸收与它们共振耦合, 如图 5.12 (a) 的能级跃迁图所示。此时, 1s2p 能级将会上下分裂成两条能级, 如图 5.12 (b) 所示, 这种现象称为 Autler-Townes 分裂^[20], 或者动态斯塔克分裂 (Dynamic Stark Splitting)。

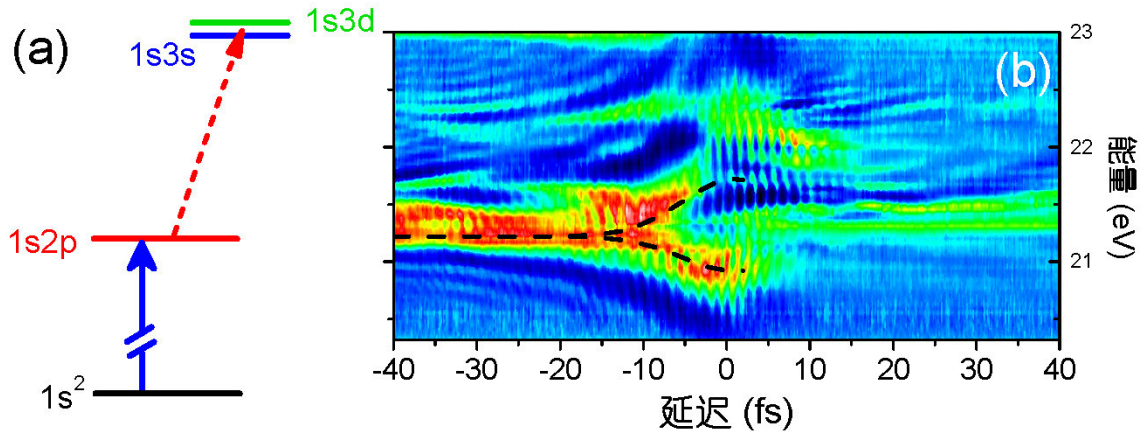


图 5.12 (a) 1s3p 和 (b) 1s4p 能级位置的亚周期改变

考察一个能被激光共振耦合的二能级系统, 其二个能级在非微扰时的本征能量和态矢分别为: E_a 和 $|a\rangle$, 以及 E_b 和 $|b\rangle$ 。在共振条件下, 激光频率 $\omega_L = \omega_{ba} + \delta$, 其中 $\omega_{ba} = \omega_b - \omega_a$, δ 为一小量。则任意时刻波函数可做如下展开:

$$|\Psi\rangle = C_a(t)e^{-iE_a t} |a\rangle + C_b(t)e^{-iE_b t} |b\rangle \quad (5.6)$$

由 Floquet 理论, 展开系数 C_a , C_b 可进一步写为如下的级数形式^[20]:

$$C_a(t) = e^{i\lambda t} \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} A_n e^{-in\omega t} \quad (5.7)$$

$$C_b(t) = e^{i\lambda t} \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} B_n e^{-in\omega t} \quad (5.8)$$

在弱电场近似下, 我们只考虑最低阶效应, 即 $n = 0$, 则把式 (5.6) 和式 (5.8) 代回式 (4.15), 可解得 λ 为:

$$\lambda_{\pm} = \frac{\delta \pm \Omega_R}{2} \quad (5.9)$$

其中 $\Omega_R = \sqrt{\delta^2 + |d_{ab}|^2 F_0^2(t)}$ 为拉比频率 (Rabi Frequency)。则展开系数可表示为:

$$C_a(t) = A_+ e^{-i\lambda_+ t} + A_- e^{-i\lambda_- t} \quad (5.10)$$

$$C_b(t) = B_+ e^{-i\lambda_+ t} + B_- e^{-i\lambda_- t} \quad (5.11)$$

代入式 (5.6), 可得系统波函数为^[20]:

$$|\Psi\rangle = e^{-i(E_a + \frac{\delta}{2})t} \left[A_+ e^{-i\frac{\Omega_R}{2}t} + A_- e^{-i\frac{\Omega_R}{2}t} \right] |a\rangle + e^{-i(E_b + \frac{\delta}{2})t} \left[B_+ e^{-i\frac{\Omega_R}{2}t} + B_- e^{-i\frac{\Omega_R}{2}t} \right] |b\rangle \quad (5.12)$$

可见, $|a\rangle$ 能级和 $|b\rangle$ 能级都会分裂成两个对称的能级。其中 $|a\rangle$ 能级的能量变成 $E_a + \frac{\delta}{2} \pm \frac{\Omega_R}{2}$ 。因此, 分裂出的两个对称能级之间的间距为 Ω_R 。

拉比频率大致和电场强度的包络成正比关系, 因此在延时趋于零的过程中, $1s2p$ 的能级分裂会逐渐增大, 并在零延时处达到最大值, 如图5.12 (b) 中虚线所示。而在零延时之后, 这种分裂迅速消失, 这是因为激光到达气体靶时几乎没有电子被激发到 $1s2p$ 态 (阿秒脉冲还没有到达), 因此也就不存在 $1s2p$ 到 $1s3p$ 的耦合跃迁。

为了确认 $1s2p$ 能级的分裂的确是和 $1s3s$ 、 $1s3d$ 之间的耦合引起的, 我们求解三能级系统 (基态、 $1s2p$ 及 $1s3s$ 或 $1s3d$) 的耦合方程组进行验证。首先我们假设激光的中心频率为 1.7 eV , 计算得到的吸光度如图5.13 (a) 和 (b) 所示。其中图 (a) 是 $1s2p$ 与 $1s3s$ 共振耦合的结果, 图 (b) 是 $1s2p$ 与 $1s3d$ 作用的结果。二者都准确再现了实验中观察到的能级分裂现象。图 (a) 中的能级分裂较图 (b) 更为对称, 这是由于 $1s2p$ 与 $1s3s$ 的能级差刚好为 1.7 eV , 与激光中心频率一致。此外, 图 (b) 中存在着高阶 Autler-Townes 分裂, 这是因为电偶极矩矩阵元 d_{2p-3d} 比 d_{2p-3s} 更大, 也即 $1s2p$ 与 $1s3d$ 的耦合强度更大。为了进一步说明 $1s2p$ 的能级分裂是由共振耦合引起的, 我们在计算中将激光的中心频率改为 3.2 eV , 然后对同样的三能级系统进行计算, 结果如图5.13 (c) 和 (d) 所示。此时能级不再对称分裂, 取而代之的是向上的交流斯塔克位移。因此, 通过仿真计算, 我们确定图5.12 (b) 中 $1s2p$ 的能级分裂是由该能级与 $1s3s$ 、 $1s3d$ 之间共振耦合引起的。

5.4.3 量子路径干涉

除了第一激发态到电离域之间的束缚态能级, 单个阿秒的超宽光谱范围还允许我们同时观察电离域之上和第一激发态能级之下的吸收谱。在图5.8中, 我们可以发现在 $\sim 25 \text{ eV}$ 和 $\sim 19 \text{ eV}$ 处存在着由双曲线组成的类似干涉条纹的结构。类似的结构在以前的光电子实验中也被人们观测到过^[21], 并被解释为量子路径干涉。电离域附近的光电子有两种不同的产生路径: 直接由阿秒光子电离基态电子产生, 这一过程称为直接路径; 与此同时, 电子也会在阿秒脉冲作用下跃迁至各激发态,

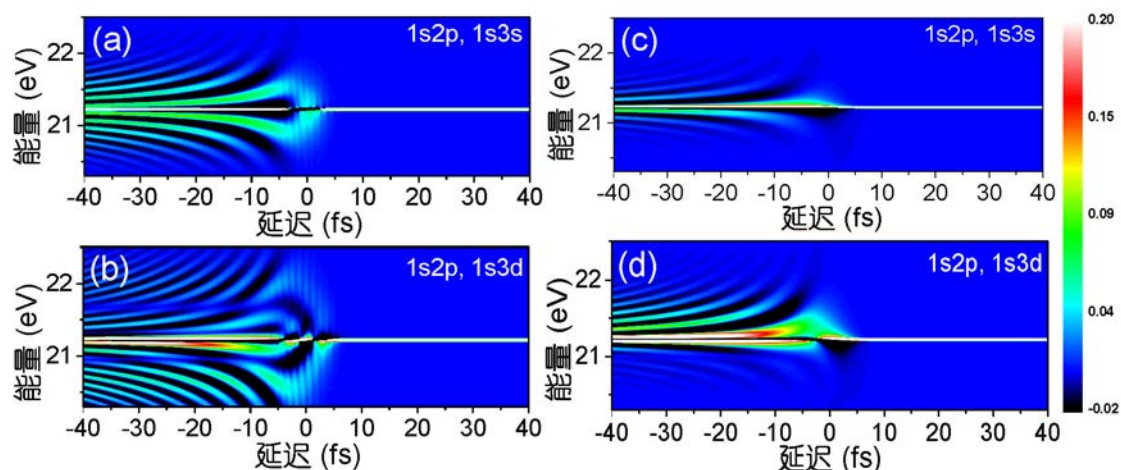


图 5.13 氦原子 1s2p 能级 Autler-Townes 分裂的计算结果；激光频率为 1.7 eV 时 1s2p 分别与 (a) 1s3s 和 (b) 1s3d 能级耦合；激光频率为 3.2 eV 时 1s2p 分别与 (c) 1s3s 和 (d) 1s3d 能级耦合

然后红外光子电离处于激发态的电子也能产生自由光电子，这个过程需要阿秒脉冲和红外脉冲的共同参与，称为间接路径。这两个路径产生的相同能量光电子波包的相位不同，因而会发生干涉现象。

虽然阿秒瞬态吸收光谱实验与阿秒光电子谱实验测量的物理量不同，我们仍然可以用量子路径干涉的思想来解释 25 eV 附近的干涉条纹。由式 (4.12) 可知，阿秒瞬态吸收光谱实验测量到的吸光度 $A(\omega)$ 是由原子极化率的频率响应 $P(\omega)$ 的虚部决定的，因此， $A(\omega)$ 的周期调制反映了 $P(\omega)$ 相位的周期变化。而对于 ~ 25 eV 的频率成分， $P(\omega)$ 也与光电子一样可经由两种不同的路径建立，如图 5.14 (a) 所示。首先在 t_A 时刻，阿秒脉冲会同时将电子激发至 1s2p 态、1snp 态及自由态；然后在 τ_d 延时之后，红外飞秒脉冲作用于原子，并通过双光子吸收将部分 1s2p 态的电子耦合至 1snp 态及自由态。这样，直接路径 (t_A 时刻) 与间接路径 ($t_A + \tau_d$ 时刻) 得到的 $P(\omega)$ 便会产生干涉，且其等相面与延时 τ_d 有如下关系^[12, 21]:

$$|\omega_{np} - \omega_{2p}| |\tau_d - t_0| + \phi_0 = 2\pi k \quad (5.13)$$

其中 k 为正整数，代表不同的等相面， t_0 、 ϕ_0 为两个常量，来自于双光子跃迁过程引起的相位改变。利用式 (5.13)，我们可以对干涉条纹进行定量分析。图 5.14 (b) 是图 5.8 (a) 在 25 eV 附近的干涉条纹，其中每一个条纹都是对应一定 k 值的等相面。我们任意选取一条 (如点线所示) 作为 $k = 1$ 对应的等相面，并利用式 (5.13) 对之进行拟合可以得到 t_0 和 ϕ_0 。然后我们可以画出不同 k 值对应的一系列等相面，如图中虚线所示，可以看出它们与实验测量的吸光度干涉条纹十分吻合。

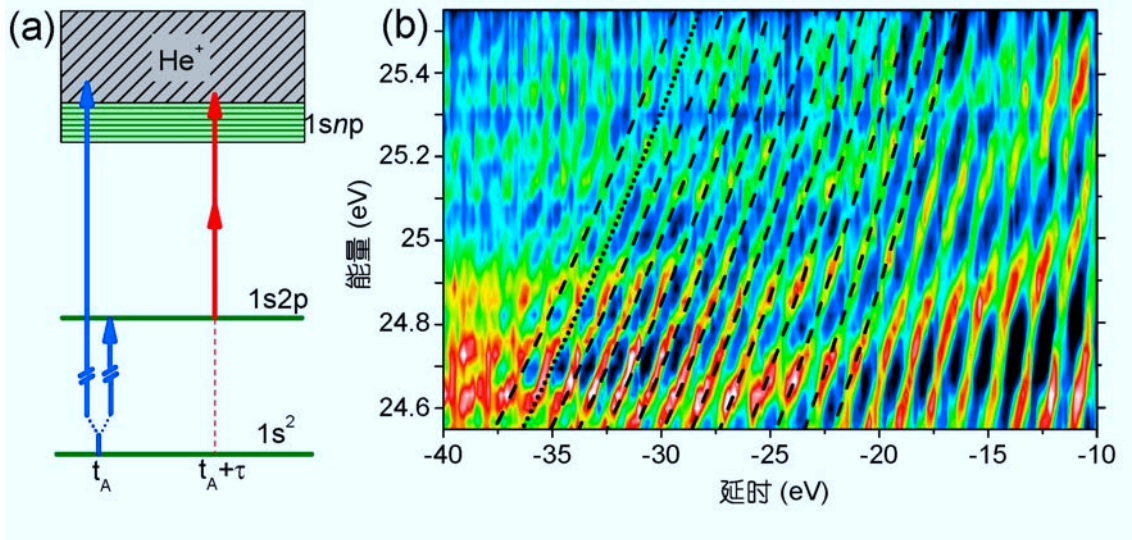


图 5.14 量子路径干涉：(a) 电离阈附近的直接和间接路径；(b) 实验测得的吸光度及量子路径干涉形成的等相面（虚线）

由式 (5.13)，我们可以求出吸光度随延时变化的振荡周期，即两个相邻等相面之间的时间间隔 T_{Mod} 。为了不失一般性，我们把间接路径的中间态记为 ω_1 ，则：

$$T_{Mod}(\omega) = \frac{2\pi}{|\omega - \omega_1|} \quad (5.14)$$

即吸光度调制频率 ω_{Mod} 为：

$$\omega_{Mod} = |\omega - \omega_1| \quad (5.15)$$

可以看出，吸光度的振荡频率与光子能量成线性关系，且斜率角为 45° ，截距为中间态能量。我们对每个光子能量下的吸光度随延时的变化做傅里叶分析，求其频谱可得吸光度的调制频率与光子能量的对应关系，如图5.15所示。其中图 (a) 和图 (b) 分别是对图5.8的实验数据和图5.9 (a) 的计算数据在 -40 到 -10 fs 延时范围内的吸光度进行频谱分析而得到。在实验数据中，吸光度在很多能量处都存在半周期振荡 ($\omega_{Mod} \approx 3.2$ eV)，分别对应于特定能级间的双光子耦合。由式 (5.15)，我们能找到各个振荡对应的中间态，如图中虚线所示。不仅是 1s2p 态，1s3p 和 1snp 态也都可以通过双光子过程跃迁至其他态而形成间接路径。图 (b) 的计算结果与实验结果一致，虽然各个振荡结构的具体位置稍有不同，但考虑到红外光子能谱的带宽，我们依然能找到它们对应的中间态。

在图5.15中，尽管 19 eV 附近的半周期振荡可以经由 1s3p 态形成间接路径，但氦原子在该能量处并没有本征能级，也即不存在直接路径。目前为止，对 19 eV 附近的半周期振荡我们还没有合理的解释。

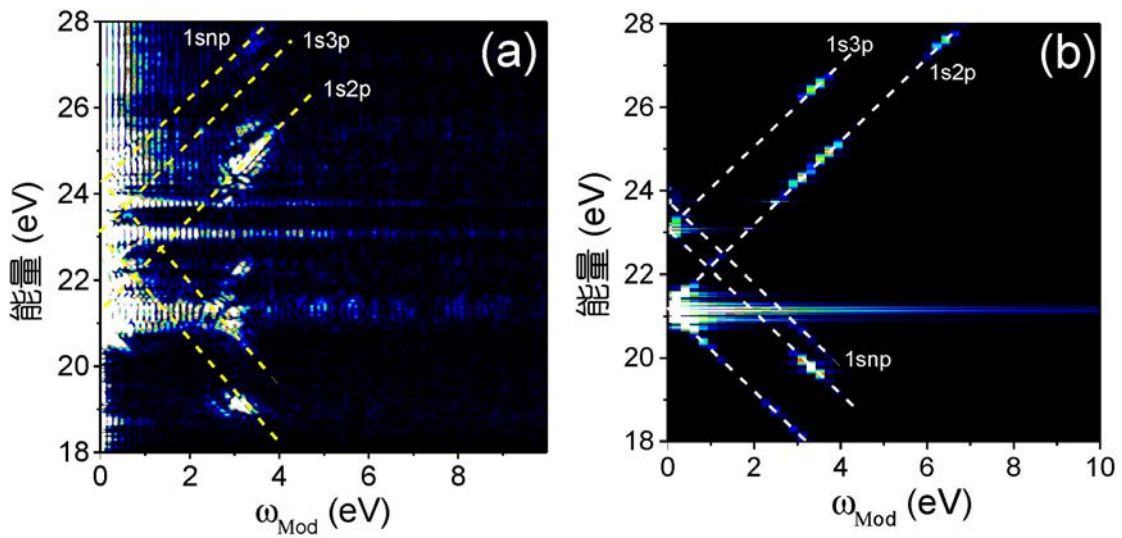


图 5.15 实验测得的 (a) 和计算得到的 (b) 吸光度在 -40– -10 fs 延时范围内的振荡频谱

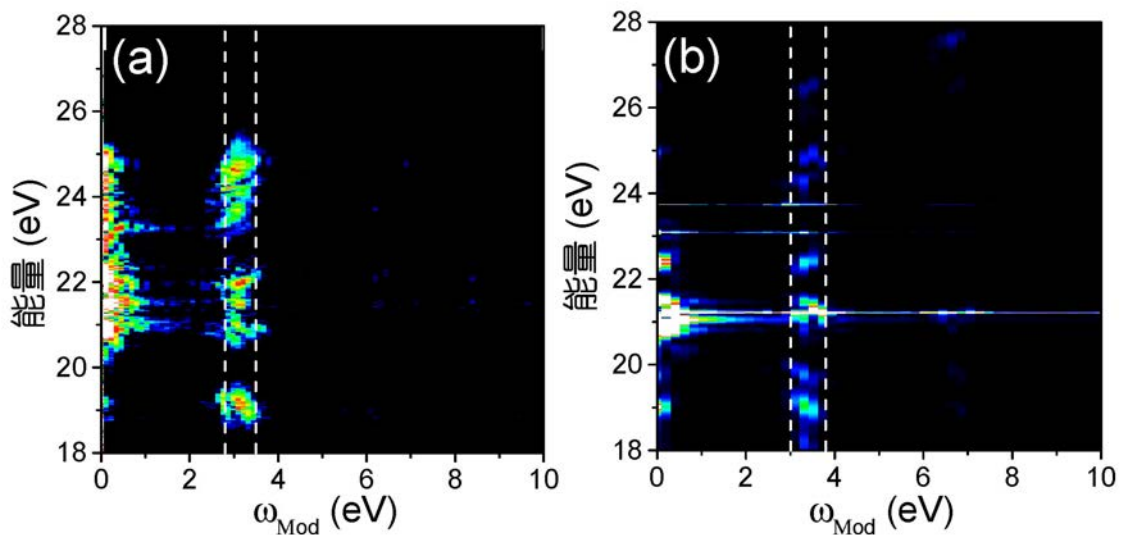


图 5.16 实验测得的 (a) 和计算得到的吸光度 (b) 在 -10–10 fs 延时范围内的振荡频率

图5.15是负延时范围内的吸光度的振荡频谱。我们也可以用同样的方法分析零延时附近的吸光度振荡，如图5.16所示。图 (a) 和 (b) 分别是氦原子吸收光谱实验数据和计算结果在 -10–10 fs 范围内的振荡频谱分布。如前文所述，这一延时范围内会出现激光诱导态 (Floquet 边带)，因此有较多的吸收结构。从图5.16中可以看出，吸收或辐射一个红外光子的诱导态 (nl^\pm) 都表现出固定的半周期特性，吸收或辐射两个光子的吸收结构 (np^{2-}) 有微弱的 1/4 周期振荡，这似乎与式 (5.14) 不符。而二者其实是不矛盾的，这是因为激光诱导态吸收或者辐射的光子数目是相对它所对应的暗态 (nl) 而言的，但它的暗态却并不是提供间接路径的中间态。其实在 Floquet 边带的形成过程中，对应于同一暗态的两个激光诱导态

(nl^{m+} 与 nl^{m-}) 之间会发生干涉^[12]。也即对 nl^{m-} 态来说, 经由 nl^{m+} 向下的跃迁是其间接路径, 这一过程辐射的光子数目为 $2m$, 因此振荡周期为 $\frac{2\pi}{2m\omega_L} = \frac{T_L}{2m}$ 。此外, 由于中间态的能量高于末态, 所以其干涉条纹的斜率为负。反之, nl^{m+} 态的干涉条纹的斜率为正。如图5.17所示的 $2s^+$ 态和 $2s^-$ 态, 二者的干涉条纹振动周期均为半个激光周期, 并且斜率相反。这也可以从图5.9的计算结果中得到印证。

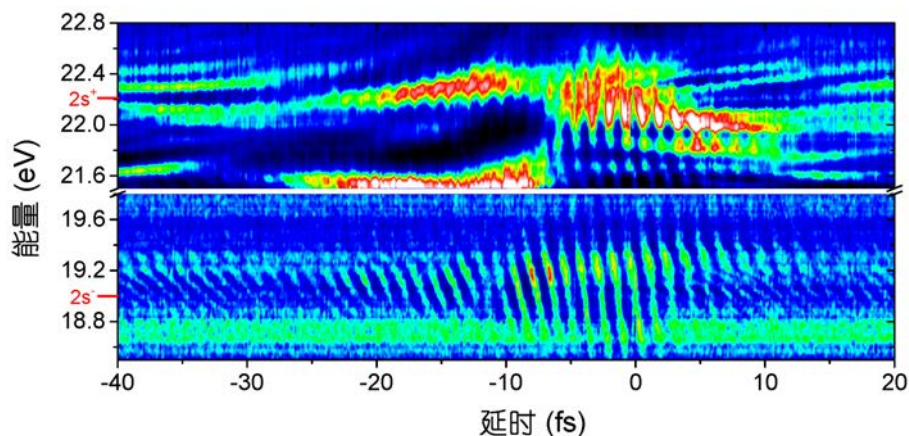


图 5.17 激光诱导态 $2s^+$ 与 $2s^-$ 的吸光度随延时的周期调制

而当延时为正 (τ_d 小于脉冲长度) 时, 激光脉冲先于阿秒脉冲达到气体池, 由红外光子激发的间接路径的最大贡献总是来自阿秒脉冲之后的第一个电场极大值, 此时间接路径与直接路径的延时总是小于半个激光周期, 并且与 τ_d 无关, 因此干涉条纹的斜率总是一个很大的值, 并不随延时改变。这与我们的实验 (图5.8) 与计算 (图5.9) 结果非常一致。

5.4.4 电离阈值的亚周期变化

有质动力能是电子在电磁场中运动一个周期所获得的平均能量, 大小由式 (2.9) 给出。人们在实验中发现处于强电磁场中的原子的电离阈会向高能偏移^[22], 且偏移大小等于电子在外加电场中的有质动力能, 因此这种现象被称作有质动力偏移 (Ponderomotive Shift)。从定义上看, 有质动力偏移是周期平均的物理量。但我们在瞬态吸收光谱实验中观察到电离阈值的亚周期变化, 因此我们在本节讨论的有质动力偏移仅仅代表氦原子的电离阈值的变化。

由式 (2.9) 可知, 有质动力能大小正比于激光光强, 因此为了增大电离阈值的偏移量, 我们把激光光强增大至 $1.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 对应的有质动力能为 0.88 eV 。在电离阈附近的瞬态吸收谱如图5.18所示。图中白色表示强吸收, 暗色表示弱吸收。在负延时处, 我们仍然可以看到量子路径干涉形成的干涉条纹。在零延时附近, 我们可以看见电离阈值随着延时呈现出半周期振荡特性。而且其振

荡结构与激光脉冲电场的平方（图中虚线）十分吻合。此外，电离能的最大偏移量约为 0.8 eV，与有质动力能大小非常接近。

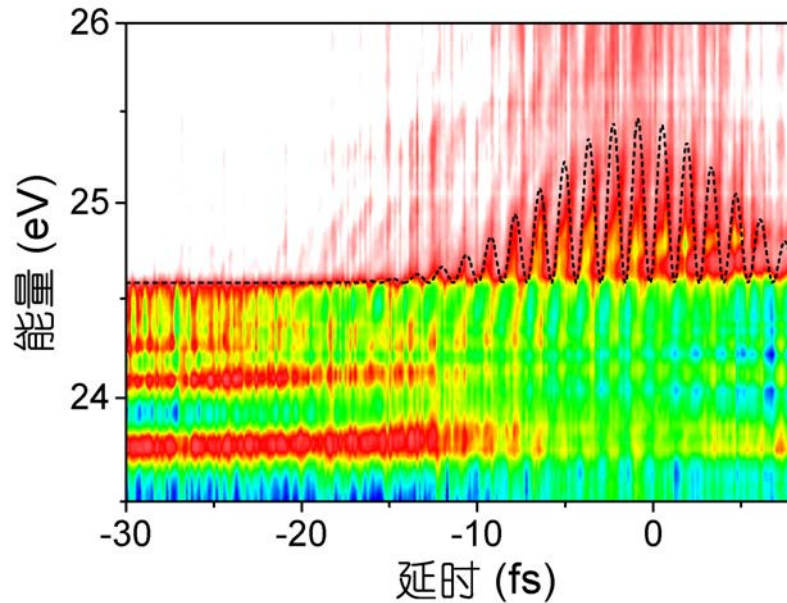


图 5.18 电离阈值的亚周期变化

本章小结

本章介绍了氦原子阿秒瞬态吸收光谱的实验结果。借助理论模型，我们详细分析了在实验中观察到的亚周期交流斯塔克效应、Autler-Townes 分裂、量子路径干涉、激光诱导态以及电离阈的亚周期变化等超快动力学过程。

参考文献

- [1] Ranitovic P, Tong X, Gramkow B, et al. IR-assisted ionization of helium by attosecond extreme ultraviolet radiation [J]. *New Journal of Physics*. 2010, 12 (1): 013008.
- [2] Tong X, Tushima N. Controlling atomic structures and photoabsorption processes by an infrared laser [J]. *Physical review A*. 2010, 81 (6): 063403.
- [3] Gaarde M B, Buth C, Tate J L, et al. Transient absorption and reshaping of ultrafast XUV light by laser-dressed helium [J]. *Physical Review A*. 2011, 83 (1): 013419.
- [4] Chen S, Schafer K J, Gaarde M B. Transient absorption of attosecond pulse trains by laser-dressed helium [J]. *Optics Letters*. 2012, 37 (12): 2211–2213.
- [5] He F, Ruiz C, Becker A, et al. Attosecond probing of instantaneous ac Stark shifts in helium atoms [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2011, 44 (21): 211001.

-
-
- [6] Bransden B H, Joachain C C J. Physics of atoms and molecules [M]. Pearson Education India, 2003.
- [7] Chini M, Zhao B, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses [J]. [Physical Review Letters](#). 2012, 109 (7): 073601.
- [8] Delone N B, Krainov V P. AC Stark shift of atomic energy levels [J]. [Physics-Uspekhi](#). 1999, 42 (7): 669–687.
- [9] Toma E, Muller H, Paul P, et al. Ponderomotive streaking of the ionization potential as a method for measuring pulse durations in the XUV domain with fs resolution [J]. [Physical Review A](#). 2000, 62 (6): 061801.
- [10] Davidson M, Wals J, Muller H, et al. Observation of full ponderomotive shift for the photodetachment threshold in a strong laser field [J]. [Physical review letters](#). 1993, 71 (14): 2192–2195.
- [11] Chen S, Bell M J, Beck A R, et al. Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium [J]. [Physical Review A](#). 2012, 86 (6): 063408.
- [12] Chen S, Wu M, Gaarde M B, et al. Quantum interference in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms [J]. [Physical Review A](#). 2013, 87 (3): 033408.
- [13] Chu S-I, Telnov D A. Beyond the Floquet theorem: generalized Floquet formalisms and quasienergy methods for atomic and molecular multiphoton processes in intense laser fields [J]. [Physics reports](#). 2004, 390 (1): 1–131.
- [14] Chini M, Wang X, Cheng Y, et al. Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light [J]. [Scientific reports](#). 2013, 3: 1105.
- [15] Nikishov A, Ritus V. Quantum Processes in the field of a plane electromagnetic wave and in constant field. Part I [R]. 1964.
- [16] Normand D, Lompré L-A, L’Huillier A, et al. Ac Stark shifts induced by a YAG laser in the nP and nF Rydberg series in xenon [J]. [JOSA B](#). 1989, 6 (8): 1513–1518.
- [17] Becker P, Fork R, Cruz C B, et al. Optical Stark effect in organic dyes probed with optical pulses of 6-fs duration [J]. [Physical review letters](#). 1988, 60 (24): 2462.
- [18] Mysyrowicz A, Hulin D, Antonetti A, et al. ” Dressed excitons” in a multiple-quantum-well structure: evidence for an optical Stark effect with femtosecond response time [J]. [Physical review letters](#). 1986, 56 (25): 2748.

- [19] Holler M, Schapper F, Gallmann L, et al. Attosecond electron wave-packet interference observed by transient absorption [J]. [Physical review letters](#). 2011, 106 (12): 123601.
- [20] Autler S H, Townes C. Stark effect in rapidly varying fields [J]. [Physical Review](#). 1955, 100 (2): 703.
- [21] Mauritsson J, Remetter T, Swoboda M, et al. Attosecond electron spectroscopy using a novel interferometric pump-probe technique [J]. [Physical review letters](#). 2010, 105 (5): 053001.
- [22] Trainham R, Fletcher G, Mansour N B, et al. Photodetachment threshold shift in a strong laser field [J]. [Physical review letters](#). 1987, 59: 2291–2294.

第六章 氦原子与氢分子的瞬态吸收光谱

上一章中，我们利用阿秒瞬态吸收光谱技术测得了氦原子内部电子的超快动力学过程，包括激光诱导态、亚周期斯塔克位移，Autler-Townes 分裂、电离阈值的亚周期偏移及量子干涉等，观察到了它们在半周期甚至 1/4 周期的超短时间尺度内的变化，充分体现了阿秒瞬态吸收光谱技术在高时间分辨上的优势。作为阿秒脉冲的主要应用之一，阿秒瞬态吸收光谱技术已经被人们广泛用于探测几飞秒^[1-4] 甚至亚周期^[5-7] 时间尺度上的电子动力学过程。但到目前为止，对于这种技术人们并没有通用的理论处理方法。为了解释实验结果的主要特性，大多数实验都被简化为三能级系统^[8-12]。虽然氦原子的瞬态吸收光谱可以在单电子近似下借助量子方法以很高的精度进行计算，但它却是一种只包含两个电子的相对简单的体系。因此，我们需要测试现有理论模型在复杂原子分子体系瞬态吸收光谱实验中的可行性。本章中我们将分别把阿秒瞬态吸收光谱技术应用于氦原子与氢分子。

6.1 氦原子瞬态吸收光谱

6.1.1 氦原子能级

氦原子基态的电子组态为 $1s^22s^22p^6$ ，只激发一个最外层价电子形成的激发态为 $1s^22s^22p^5nl$ 。与氢原子不同，氦原子的基态为 p 态，因此只吸收一个阿秒光子可以跃迁至 s 态或者 d 态。文献 [9] 中列出了详细的氦原子能级信息，我们选择较低的 32 个能级列于表 6.1 中。

表 6.1 氦原子能级^[9]

电子组态 ($2s^22p^5nl$)	能量 (eV)	电子组态 ($2s^22p^5nl$)	能量 (eV)	电子组态 ($2s^22p^5nl$)	能量 (eV)	电子组态 ($2s^22p^5nl$)	能量 (eV)
3s	16.848	6s	21.043	8p	21.399	12s	21.542
3p	18.965	5d	21.113	9s	21.430	11d	21.548
4s	19.779	6p	21.162	8d	21.447	13s	21.561
3d	20.139	7s	21.140	9p	21.461	12d	21.566
4p	20.368	6d	21.280	10s	21.481	14s	21.576
5s	20.662	7p	21.314	9d	21.492	13d	21.580
4d	20.805	8s	21.357	11s	21.516	15s	21.588
5p	20.901	7d	21.381	10d	21.524	14d	21.591

图 6.1 (a) 是实验中测得的氦原子的吸收截面 (浅色填充实线)，以及各个吸收峰对应的氦原子能级。可以看出氦原子各束缚态以及电离阈值集中在 16–22 eV

的能量范围内，经过铝膜之后的阿秒脉冲光谱宽度能完全覆盖这一能量范围。在瞬态吸收光谱实验中，电子在阿秒脉冲及红外激光脉冲作用下可能发生的跃迁路径如图 (b) 所示。其中实线代表能在吸收谱中直接观察到的 s 及 d 态能级，虚线能级代表跃迁禁戒的 p 态能级，因而它们是在吸收谱中观察不到的。图中左侧的粗箭头表示吸收一个阿秒光子，右侧的细箭头表示吸收一个红外光子。其中最低激发态 3s 可以吸收一个光子跃迁至 3p 能级，或者吸收两个光子跃迁至 3d 能级，这种共振耦合会导致 3s 能级的 Autler-Townes 分裂。而 4s 以上能级的电子都能被一个红外光子电离，这种非共振的耦合会造成能级的交流斯塔克位移，也会引起不同跃迁路径之间的量子干涉。

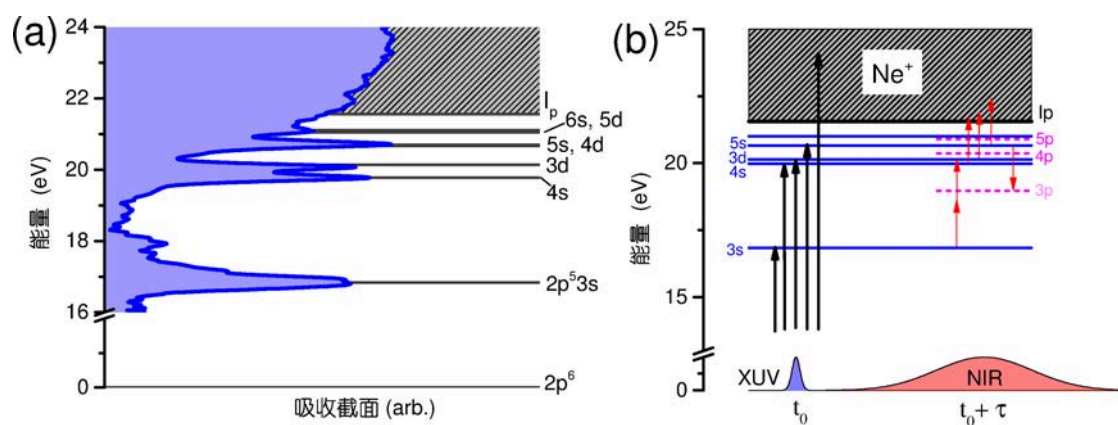


图 6.1 氖原子能级示意图: (a) 实验测得的氖原子的吸收截面及各吸收峰对应的能级; (b) 阿秒脉冲和红外飞秒脉冲引起的电子跃迁示意图

6.1.2 实验结果

氖气的瞬态吸收光谱实验是和氦气吸收谱实验在同一套实验装置完成的。由于氖原子光谱范围与氦原子十分接近，而且都在铝膜透射窗口之内，所以单个阿秒脉冲的产生方法与光谱分布与氦原子实验一致 (图5.2)。但氖原子第一激发态及电离阈值能量比氦的稍低，因此需要相应地调整极紫外光谱仪的范围。通过微调 MCP 的位置和光栅的角度，我们把光谱仪的测量范围调整为 15.5–24 eV。通过原位标定法^[13]，最终确定其分辨率可以达到 60 meV。实验中，吸收池中的氖气气压控制为 40 torr。对于电离阈之上的光谱成分来说，这大概会吸收掉 75% 的能量。延时扫描的时间步长依然取为 141 as，延时的锁定误差约为 50 as。每一个延时下，光谱采集的积分时间为 10 s，也即测量信号为 1×10^4 个阿秒脉冲透射谱的加和，以保证测量光谱具有较好的信噪比。

首先我们在较低的光强 ($1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$) 下测量氖原子的吸光度随延时的变化，实验结果如图6.2 (a) 所示。我们能观测到各束缚态及电离阈之上的吸收结

构，它们对应的能级分别标注于图的左侧。在负延时处，可以看到 s 态和 d 态的能级在红外激光的微扰下被展宽。尤其是高激发态的能级 ($n>5$)，能在一个红外光子作用下发生电离，造成的能级展宽使它们相互重叠而无法分辨，因而在电离阈上下存在一块较大的吸收区。相比之下，当阿秒脉冲先于红外激光到达时，原子能级受红外激光影响较小，高能激发态因线宽太窄而无法被谱仪测量，此时电离阈与束缚态有着明显的界限。在零延时附近， $3s$ 能级因共振耦合而发生 **Aulter-Townes** 分裂。较高的激发态有着明显的交流斯塔克位移，特别是 $4s$ 及 $3d$ 能级，有着与氦原子 $3p$ 、 $4p$ 能级十分相似的亚周期斯塔克效应。与氦原子相比，氖原子的激光诱导态较少，这是因为每个电子层中只有 p 态才能产生激光诱导态。在电离阈之上，我们可以观察到 $4p^+$ 激光诱导态，但位于 $3s$ 态和 $4s$ 态之间的 $4p^-$ 激光诱导态却难于分辨。

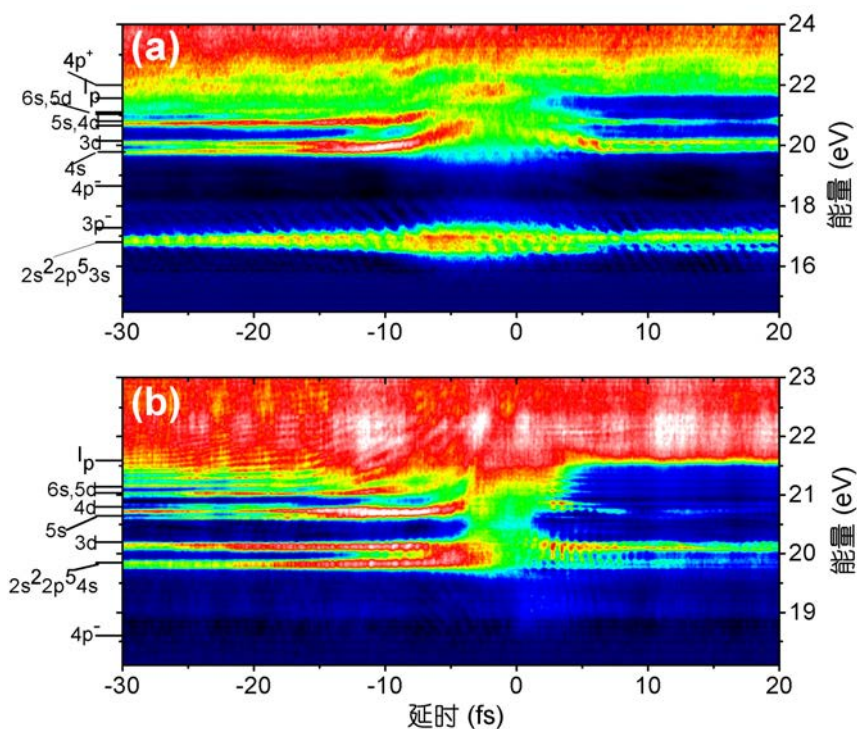


图 6.2 红外飞秒激光场的峰值强度分别为 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 (b) $7.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时氖原子的吸光度随延时的变化

我们把红外激光场强度增加至 $7.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ，并调节光谱仪，使其测量范围集中在电离阈值附近，测得的瞬态吸收光谱如图 6.2 (b) 所示。此时谱仪的观察范围为 18–23 eV。与图 (a) 相比，在电离阈附近的负延时处，我们可以看到双曲线形状的量子路径干涉条纹。而且在 $4p^-$ 激光诱导态对应的位置也能观测到较弱的量子干涉条纹，而且其斜率为负，与量子干涉理论相符。在零延时处，交流

斯塔克效应引起的束缚态能级移动十分明显，而且它们持续时间长度比图 (a) 更短，表明此时的激光脉冲也更短。

在两组实验数据中， $3s$ 态和 $4p^+$ 激光诱导态存在着直接-间接路径间的量子路径干涉。图6.3 (a) 和 (b) 分别给出了电跃迁到这两个态的直接和间接路径。对于 $3s$ 态，基态电子可以吸收一个阿秒光子而直接到达，也可以在 τ_d 延时之后由 $3d$ 态电子辐射两个红外光子向下跃迁到达。而 $4p^+$ 态处于电离阈之上，也存在由单个阿秒光子吸收引起的直接路径，同时， $4p^-$ 态也可以吸收两个红外光子而跃迁至 $4p^+$ 。 $3s$ 和 $4p^+$ 态的量子干涉都辐射或吸收了 2 个红外光子，因而都有半个激光周期的振荡结构，如图6.3 (c) 所示。其中圆点是吸收截面在这两个态处的实验测量值，实线是对圆点光滑之后的曲线。可以看出， $3s$ 态（深色实线）的量子干涉在整个负延时区间都存在，而 $4p^+$ 态（浅色实线）的量子干涉只存在于零延时附近，这是因为 $4p^+$ 和 $4p^-$ 等激光诱导态的形成必须要阿秒脉冲和红外激光的同时参与。

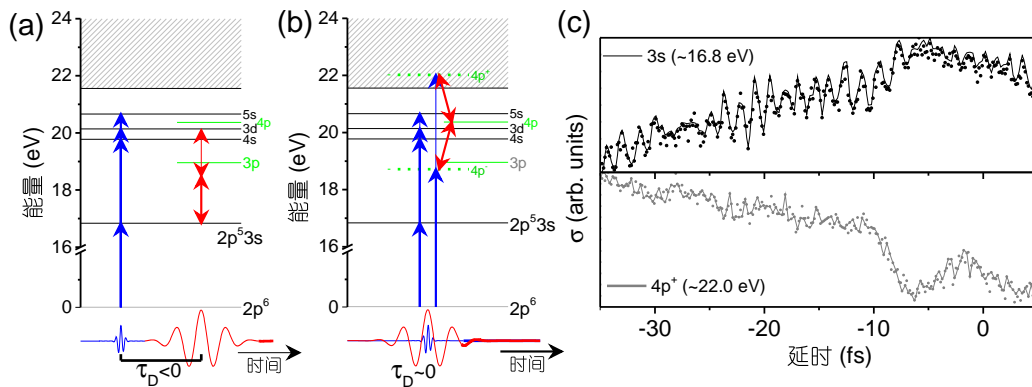


图 6.3 $3d$ 态 (a) 和 $4p^+$ 激光诱导态 (b) 的直接和间接路径；以及二者吸光度随延时的半周期振荡

6.1.3 氦原子瞬态吸收光谱的计算

6.1.3.1 基矢展开法求解

在上一章氦原子瞬态吸收光谱计算中，通过把波函数在有限个基矢下展开，薛定谔方程能转化为展开系数的耦合微分方程组 (式 (4.20))，从而能大大简化计算，并得出与实验十分吻合的计算结果。这里，我们利用相同的方法来处理氦原子。计算中一共用到氦原子的 33 个束缚态，各激发态能级及其本征能量见表6.1。由于能级间的电偶极矩矩阵元并不已知，我们把选择定则允许的跃迁所对应的矩

阵元设为 1，不允许的设为 0。这种近似将使计算得到吸光度绝对数值变得不准确，但却依然能保留量子干涉，能级位移及分裂等只与吸光度的变化相关的特性。计算中用到的激光脉冲长度为 6 fs，光强为 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ，与图 6.2 (a) 的实验条件一致。计算得到吸光度随延时的变化如图 6.4 所示。

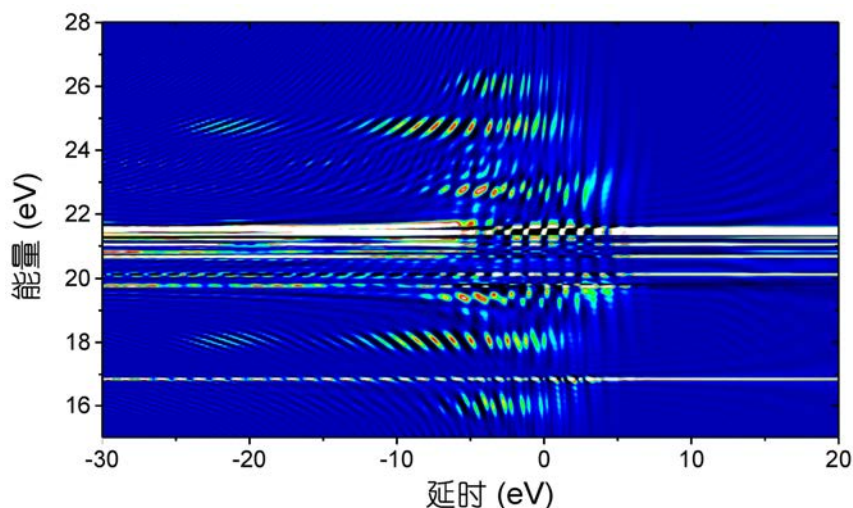


图 6.4 基矢展开法求解氖原子瞬态吸收光谱

计算结果再现了 $4p^-$ 、 $4p^+$ 激光诱导态及电离阈附近的量子干涉，但 $3s$ 态的能级分裂及高激发态的交流斯塔克位移等现象并没有出现在计算结果中。总体上基矢展开法的计算结果与实验结果相去甚远。因此，在氖原子中，瞬态吸收光谱涉及到的电子运动要比氦原子更为复杂，有限基矢的展开法已无法得到较为准确的结果。

6.1.3.2 数值求解含时薛定谔方程

为了更准确地求解氖原子的瞬态吸收谱，我们直接在单电子近似下数值求解含时薛定谔方程的积分形式^[14]：

$$\Psi(t) = -i \int_T^t U(t, t') V U_0(t', T) \psi_0 dt' + U_0(t, T) \psi_0 \quad (6.1)$$

式中 $T = -\infty$ 是系统的初始时刻， $V = -\vec{r} \cdot \vec{F}(t)$ 是原子与激光场的相互作用势， $U(t, t')$ 和 $U_0(t, t')$ 是波函数的时间演化算子：

$$\begin{aligned} U(t, t') &= e^{-i \int_{t'}^t H dt''} \\ U_0(t, t') &= e^{-i H_0 (t-t')} \end{aligned} \quad (6.2)$$

其中 H_0 是无外场时氖原子的哈密顿量， $H = H_0 + V$ 是氖原子在阿秒脉冲及红外飞秒脉冲作用下的哈密顿量。因此，式 (6.1) 第一项的物理意义为：初始波函数先在外场扰动的原子中传播至时刻 t' ，然后遇到外电场并相互作用（电离），之

后的波函数继续在外场作用下的原子中传播至时刻 t 。第二项只是描述波函数在 H_0 下的传播，与激光-原子相互作用的动力学过程无关。

由式 (6.1) 解出任意 t 时刻的波函数 $\Psi(t)$ ，则光子吸收截面可表述为^[15, 16]：

$$\sigma(\omega) = \frac{4\pi}{cS(\omega)} \left| \int_{-\infty}^{\infty} \langle \Psi(t = -\infty) | r | \Psi(t) \rangle e^{i(\omega + \epsilon_g)t} dt \right| \quad (6.3)$$

式中 $S(\omega)$ 为入射阿秒脉冲的光谱强度， ϵ_g 为基态能量。上式与文献 [15] 中的吸收截面公式略有不同，这是因为我们的实验中用到的是超短飞秒激光脉冲，因而不需要对自相关函数进行周期平均。

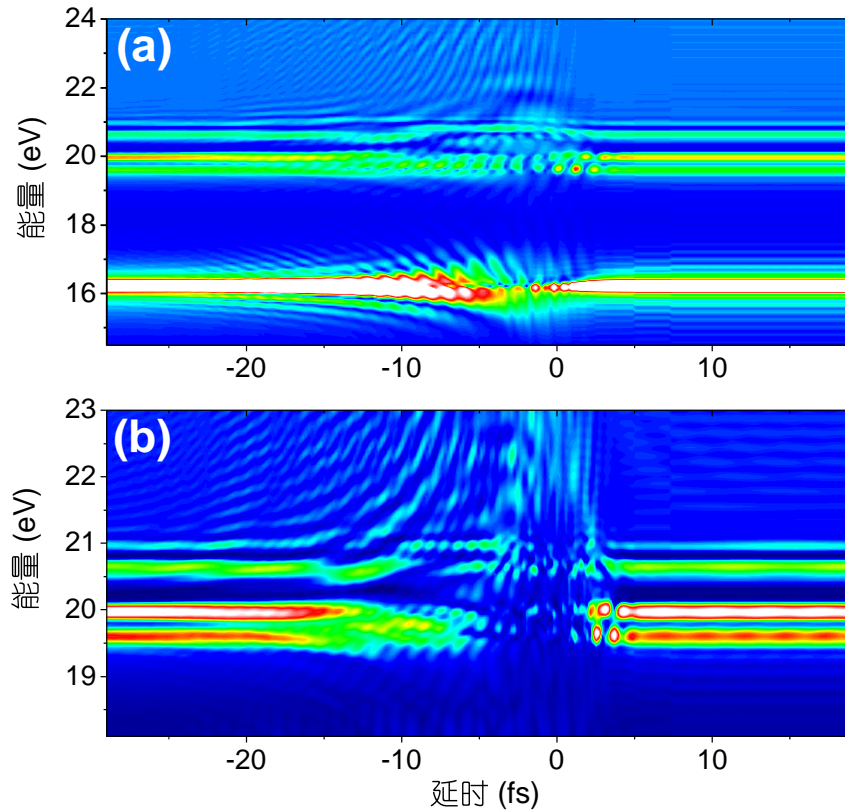


图 6.5 激光强度分别为 (a) $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 (b) $7.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时的氩原子瞬态吸收光谱^[16]

在计算中，一共用到了 1000 个径向格点和 32 个分波数目，计算的收敛性通过改变不同的仿真参数得到确认。计算由 X. M. Tong 的小组完成，得到氩原子光子吸收截面随延时的变化如图 6.5 所示。其中 (a) 图和 (b) 图对应的激光强度分别为 $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 (b) $7.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 。比较图 6.5 和图 6.2，可以看出计算结果再现了瞬态吸收光谱的主要特性，包括激光诱导态、量子干涉条纹、3s 态的 Aulter-Townes 分裂及高激发态的交流斯塔克位移等。和实验结果一样， $4p^-$ 态比 $4p^+$ 态的吸光度弱许多，这可能是由于 $4p^+$ 态与连续态重合，因而吸收得到增强，

相比之下, $4p^-$ 态与任何束缚态都相距较远, 因而吸光度较弱。同时, 我们也注意到计算得到的各激发态能级与实验结果稍有偏差, 这是因为计算中用到的模型势^[17] 只是一种近似, 并不能代表氦原子内部的真实势场。

此外, 计算结果在许多细节上与实验结果不相符合, 如 $4s$ 和 $3d$ 态的交流斯塔克位移幅度、各个吸收结构的吸光度 (或吸收截面) 相对大小等, 表明我们的理论模型仍过于简化。虽然如此, 我们的模型再现了实验结果的大部分特性, 揭示了各吸收结构的内在物理机制, 为复杂体系下的瞬态吸收光谱提供了必要的理论基础。

6.1.4 瞬态吸收光谱的操控

和氦原子一样, 对于激光诱导态的指认, 我们可以通过在计算中移除相关的态来进行确认^[18, 19]。例如对于 $4p^+$ 态, 我们在计算中分别移除 $3p$ 、 $4p$ 及 $4f$ 态, 发现这一结构中只有 $4p$ 态存在时才会出现。除此之外, 关于 $3s$ 态附近量子干涉的起源, 我们也可以用类似的测试计算来进行确认, 但本节中我们采用一种实验方法来验证上文的推测。

上文中提到 $3s$ 态处的量子干涉是由直接-间接路径跃迁引起的, 如图6.3 (a) 所示, 其中的间接路径是经由 $3d$ 态辐射两个光子的向下跃迁。如果我们能在实验中阻止电子被阿秒脉冲激发到 $3d$ 态, 就能抑制掉间接路径, 这种干涉现象也会因此消失。为了做到这点, 我们将滤除残留激光用的铝膜换成 200 nm 厚的铟膜。铟膜的透射率如图4.6所示, 其透射窗口约为 $11\text{--}17\text{ eV}$ 。这样, 阿秒脉冲只能将电子激发到 $3s$ 能级 (16.8 eV), 经由 $3d$ 态的间接路径会被抑制。实验结果如图6.6 (a) 所示。和我们的分析一样, $3s$ 态的半周期振荡完全消失。然而, 红外激光诱发的从 $3s$ 态到 $3d$ 态的共振跃迁仍然存在, 所以此时能看到十分清晰的 Autler-Townes 分裂。图6.6 (b) 是利用铟膜滤波的计算结果, 它与实验结果非常一致, 只能观察到 $3s$ 态的能级分裂, 而没有任何量子干涉现象。在该实验中, 我们确认了 $3s$ 态量子干涉的来源, 并第一次在实验上展示了对瞬态吸收光谱亚周期结构的操控。

本节中, 我们将阿秒瞬态吸收光谱技术应用于含有 10 个电子的复杂体系-氦原子, 观察到了 Autler-Townes 分裂、亚周期交流斯塔克效应、量子干涉及激光诱导态等动力学过程。虽然这种多体问题的精确数值求解无法实现, 但基于单电子近似的模型却依然能够得出与实验十分一致的结果, 为阿秒瞬态吸收光谱技术在复杂体系中的应用奠定了基础。

6.2 氢分子瞬态吸收光谱

目前, 阿秒瞬态吸收光谱技术已被成功应用各种原子体系中, 具有较为成熟的实验手段及理论模型。但要把这种技术应用于分子体系, 仍然面临着巨大的挑

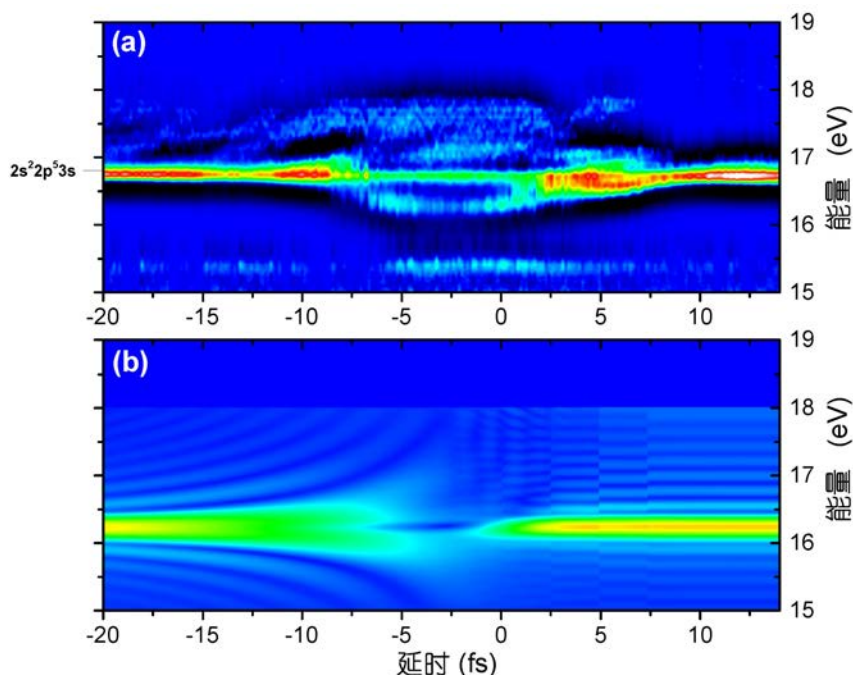


图 6.6 (a) 经过铟膜过滤之后阿秒脉冲的吸收谱, 3s 态量子干涉的消失, 表明其间接路径被抑制; (b) 利用铟膜对阿秒脉冲进行滤波而计算得到的瞬态吸收谱

战。首先, 分子的能级范围一般在 10–20 eV, 要在如此低能的区域内产生单个阿秒脉冲并不容易; 其次, 分子的能级结构更加复杂, 各个能带里的振动能级十分稠密, 不同能带的振动能级甚至会出现重叠, 这对谱仪的能量分辨本领及实验数据分析造成了很大的挑战; 最后, 分子的吸收光谱同时受电子运动及核运动的影响, 物理机理更为复杂。本节中, 我们介绍氢分子瞬态吸收光谱的实验结果, 这是阿秒瞬态吸收光谱技术在分子体系的首次尝试。

6.2.1 氢分子的势能曲线

氢分子 H_2 各激发态的势能曲线及振动能级^[20] 如图6.7所示, 其中各能级符号沿用文献^[20] 中的标记。氢分子的基态为 $X^1\Sigma_g^+(1s\sigma)^2$, 并没有在图中标出。图中绝大部分的氢分子激发态都是只有一个电子被激发形成的。能级谱项符号后给出了被激发的电子在联合原子近似下的分子轨道, 而另一个电子仍然留在基态的分子轨道 $1s\sigma$, 因此并未注明。但 $F^1\Sigma_g^+$ 能级是个例外, 它的两个电子同时被激发至 $2p\sigma$ 分子轨道。 $^2\Sigma_g^+$ 以上是 H_2^+ 氢离子能级。可以看出氢分子能级大都处在 11–18 eV 的能量范围, 处于铟膜的透射窗口之内。各势能曲线在势阱内还存在着许多分离的振动能级, 如图中水平直线所示。图中的竖直阴影区域表示弗兰克-康登 (Franck-Condon) 区域, 可以认为从基态到激发态的跃迁只有在这个区域里才能发生。

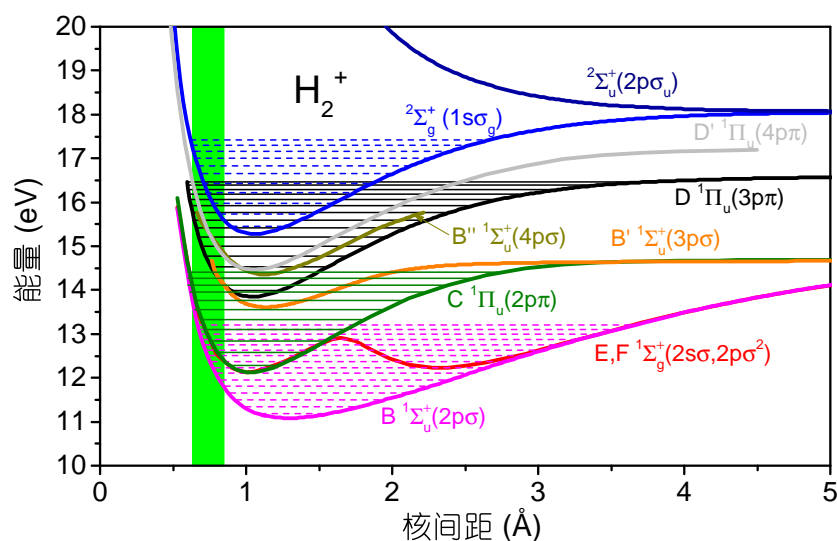


图 6.7 氢分子激发态的势能曲线及振动能级

氢分子的电子跃迁必须满足一定的选择定则。首先，跃迁前后的波函数相应于 i 变换必须奇偶相反，也即只有 $g \leftrightarrow u$ 的跃迁是允许的，因此从基态到 $E, F 1\Sigma_g^+$ 谱项的跃迁是禁戒的。其次， $\Delta\Lambda = 0, \pm 1$ ，因此只有 $\Sigma \leftrightarrow \Sigma$ 、 $\Sigma \leftrightarrow \Pi$ 之间的跃迁是允许的。但 $\Sigma^+ \leftrightarrow \Sigma^-$ 是禁戒的。另外在 $\Sigma \leftrightarrow \Sigma$ 跃迁中，常包含 σ 轨道，此时有 $\sigma \leftrightarrow \sigma$ 禁戒，但由于分子轨道混合，这种禁戒并不严格（半禁戒），仍然有较小概率的跃迁，如基态到 $B 1\Sigma_u^+$ 的跃迁便是这种情况。最后， $\Delta S = 0$ ，即只有多重态相同的电子才能跃迁，图中的氢分子能级都是单重态，不受此规则限制。另外还有其他的选择定则，不过它们对图6.7中的氢分子能级没有限制，我们不再一一列出。

6.2.2 实验结果及讨论

6.2.2.1 氢分子的吸收光谱

由于氢分子能级大都处在 11–18 eV 的能量范围，我们必须用具有低电离能的氙气 ($I_p = 12.1$ eV) 来产生单个阿秒脉冲，并用铟膜来滤除残留红外激光。最终得到的单个阿秒脉冲光谱范围为约 12–17 eV，能支持 ~ 750 as 的脉冲。实验中加入吸收气体池中氢气气压为 30–40 torr。

图6.8 (a) 为测得的氢分子的吸光度。与原子吸收谱测量中必须借助激光的微扰来展宽能级不同，分子的振动谱较宽，可以直接测量。这是因为分子的各个振动能级实际上是由许多转动能级组成的能带，当谱仪无法分辨时就只能测得一个较宽的吸收结构。因此，测量氢分子的吸收谱时，我们可以挡住红外激光或者让红外激光远远提前于阿秒脉冲到达气体池（正延迟）。图中的竖线是各个振动能级的位置^[20]，它们和测得的吸收峰十分吻合。在 11.5 eV 以下，由于入射阿秒脉冲不含这部分光谱，所以没有测量到任何吸收结构。在 12 eV 左右，我们能

看到 $B^1\Sigma_u^+$ 谱项的振动谱 (浅色实线), 但其吸光度受 $\sigma \leftrightarrow \sigma$ 半禁戒的抑制而较弱。在 12.25 eV 到 14.75 eV 之间的较强的吸收峰来自于 $C^1\Pi_u^+$ 谱项的振动能级。14–16 eV 之间虚线对应的吸收峰是 $D^1\Pi_u^+$ 谱项的振动能级。而处于二者之间的 $B^1\Sigma_u^+$ 谱项吸收谱同样由于选择定则禁戒而十分微弱。

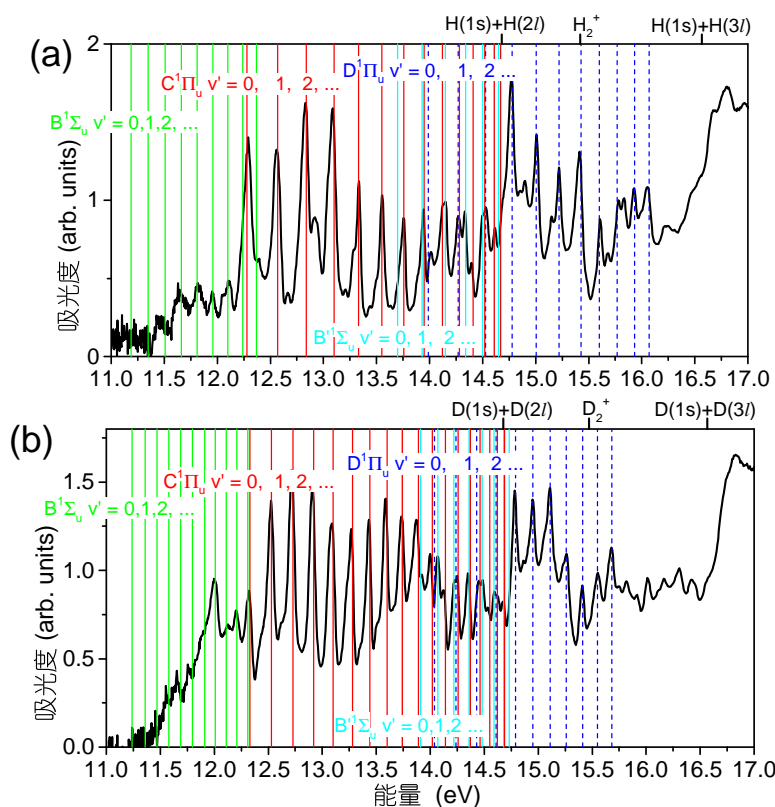


图 6.8 (a) H_2 与 (b) D_2 的透过率

为了了解核运动对吸收光谱的影响, 我们也做了氢分子同位素分子—氘分子 (D_2) 的瞬态吸收实验。图6.8 (b) 是测得的氘分子的吸光度。它与氢分子的吸收谱非常近似, 二者只有着非常细微的差别。可以看出, 在这两种分子的吸收谱中, $C^1\Pi_u^+$ 和 $D^1\Pi_u^+$ 谱项的光谱占着统治地位。

6.2.2.2 氢分子及氘分子的瞬态吸收谱随延时的变化

当红外激光强度为 $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时, 测得的 H_2 与 D_2 的瞬态吸收谱 (透过率) 随延时的变化如图6.9所示。为了保证各个吸收结构有较好的对比度, 图中给出的是透射率而不是吸光度。吸收谱中主要的能级结构为 $C^1\Pi_u^+$ 和 $D^1\Pi_u^+$ 谱项的各个振动能级, 如各图右轴的标记所示。总体上看, 负延时区间内的 H_2 及 D_2 对阿秒脉冲的吸收明显强于正延时, 这是由于红外激光引起了 $C^1\Pi_u^+$ 和 $D^1\Pi_u^+$ 能态与其他激发态之间的耦合。 H_2 透射谱在 -15 fs 延时及 20 eV 能量处有一个明显的透射峰, 相似的结构也可以在 D_2 透射谱 -20 fs 的位置观察到。

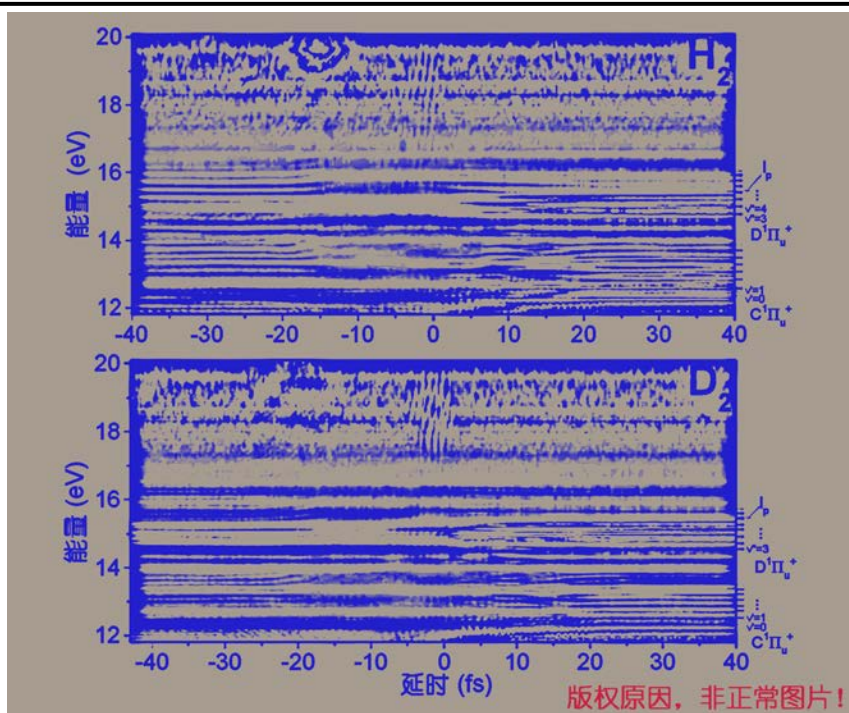


图 6.9 红外激光光强为 $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时 H_2 与 D_2 的瞬态吸收谱随光强的变化

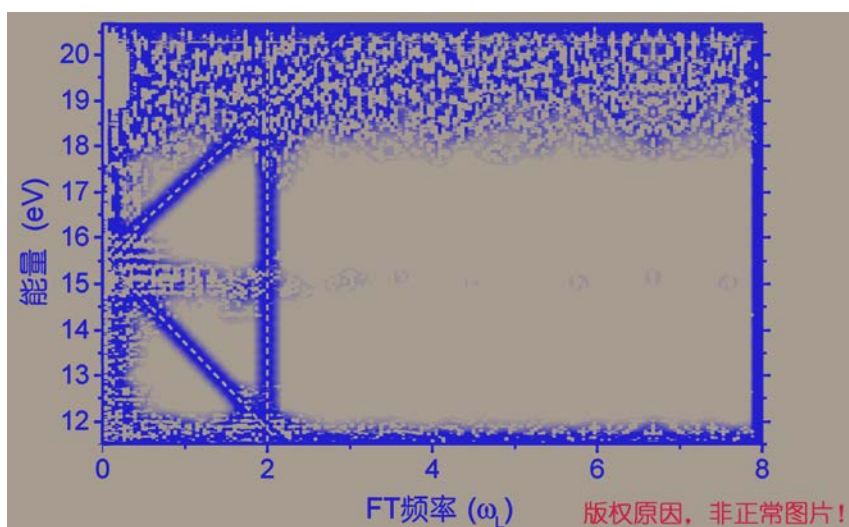


图 6.10 H_2 分子透射谱中振荡结构的频谱分析

此外，我们能在图中看到一些很熟悉的现象，如负延时处能级的交流斯塔克位移及量子干涉、零延时附近的激光诱导态等。图中量子干涉引起的透过率半周期振荡较弱，我们可以通过频谱分析能看得更清楚。图6.10是 H_2 的透过率在负延时范围内的振荡频谱。可以看出半个光学周期振荡（2倍光学频率）的频谱分量在 12.5 eV 和 19 eV 附近有较强期的振幅。由量子干涉理论，引起这种振荡的中间态与振荡结构连线的斜率为 1，由此可以确定这两个半周期振荡结构都是由 $\text{D}^1\Pi_u^+$ 谱项在 15 eV 附近的振动能级引起的。从图6.7的势能曲线可以推测，19 eV 附近

的振荡可能来自 $D^1\Pi_u^+$ 谱项的振动能级吸收两个红外光子跃迁至 H_2 的 $^2\Sigma_u^+$ 解离态形成的间接路径与氢分子单光子电离过程的量子干涉；而 12.5 eV 附近的结构则来自 $D^1\Pi_u^+$ 谱项的振动能级辐射两个光子到达 $E,F^1\Sigma_g^+$ 谱项的跃迁。而且从图6.9可以看出，19 eV 附近的干涉主要集中在延时为 -20 fs 的透射峰附近，而 12.5 eV 处的干涉结构在负延期内一直存在，这是因为 $D^1\Pi_u^+ \leftrightarrow ^2\Sigma_u^+$ 跃迁只有核间距为 2.5 左右时才能发生，而 $D^1\Pi_u^+$ 的势阱位置与 $E,F^1\Sigma_g^+$ 第一个势阱正好对齐， $D^1\Pi_u^+$ 谱项中处于较低振动态的电子能随时向下迁至 $E,F^1\Sigma_g^+$ 谱项。

进一步将红外激光脉冲的强度增加至 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ，测得的单个阿秒脉冲经过 H_2 与 D_2 分子之后的透射谱随延时的变化如图6.11所示。此时两种分子透射谱与低光强的情况十分接近，只是各种结构更加明显。

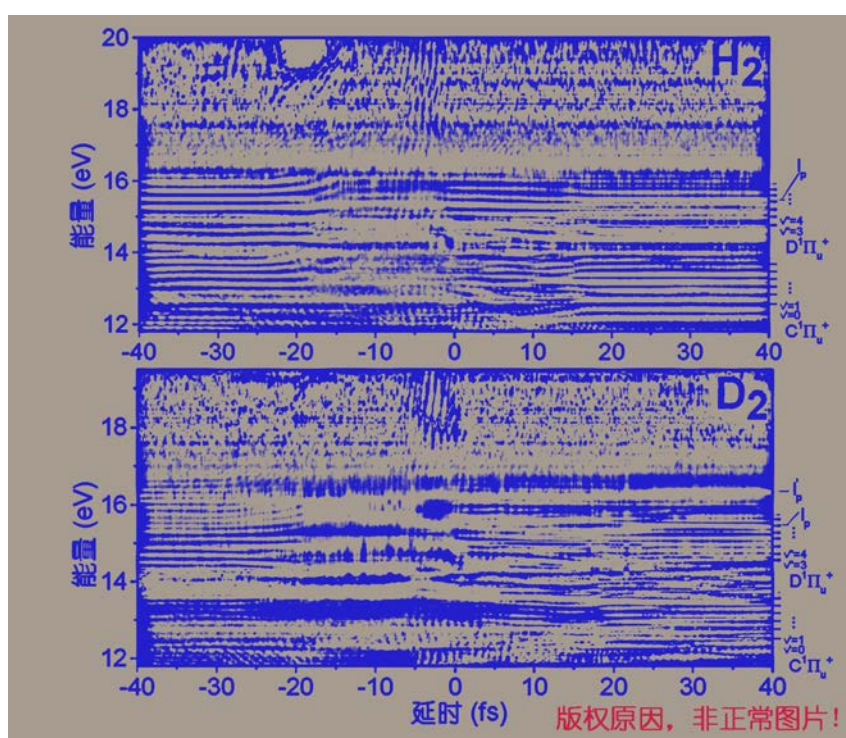


图 6.11 红外激光光强为 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 时 H_2 与 D_2 的瞬态吸收谱随光强的变化

6.2.2.3 分子核运动的证据

在图6.9及图6.11的透射谱中， $C^1\Pi_u^+$ 谱项振动能级的透过率在从负延时到正延时过程中有个明显而缓慢的增长过程。进一步分析可以发现 H_2 和 D_2 的增长速率是不一样的，如图6.12所示。其中深色和浅色实线分别是 H_2 和 D_2 分子 $C^1\Pi_u^+$ 谱项各振动能级透过率的平均值随延时的变化曲线， H_2 透过率的增长速度要大于 D_2 。对这两条曲线作如下的 S 型生长曲线拟合：

$$T_{IAP} = T_{min} + \frac{T_{max} - T_{min}}{1 + e^{\frac{\tau_d - \tau_0}{\tau}}} \quad (6.4)$$

式中 τ 可以看作是曲线从最小值 T_{min} 增加到最大值 T_{max} 所需要的时间。拟合结果如图中虚线所示, H_2 和 D_2 曲线的增长时间分别为 $\tau_{H_2} = 3.73$ fs 和 $\tau_{D_2} = 7.31$ fs。综合多组实验结果我们得出 $\tau_{H_2} = 4.2 \pm 0.8$ fs, $\tau_{D_2} = 6.2 \pm 1.6$ fs, 二者的之比 $\gamma = \frac{\tau_{D_2}}{\tau_{H_2}}$ 在 1.5 ± 0.5 范围内, 恰好为 D 原子核与 H 原子核质量之比的开方, 因此这种差异可能来自核的振动。

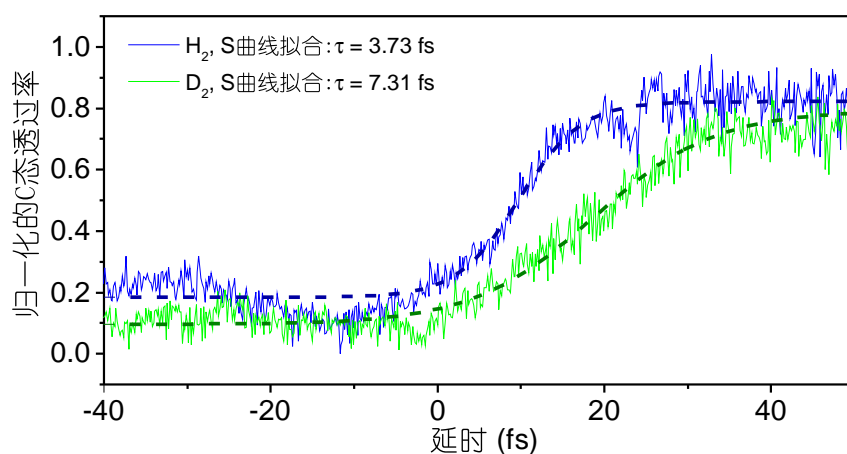


图 6.12 H_2 及 D_2 C 态透过率变化速率比较

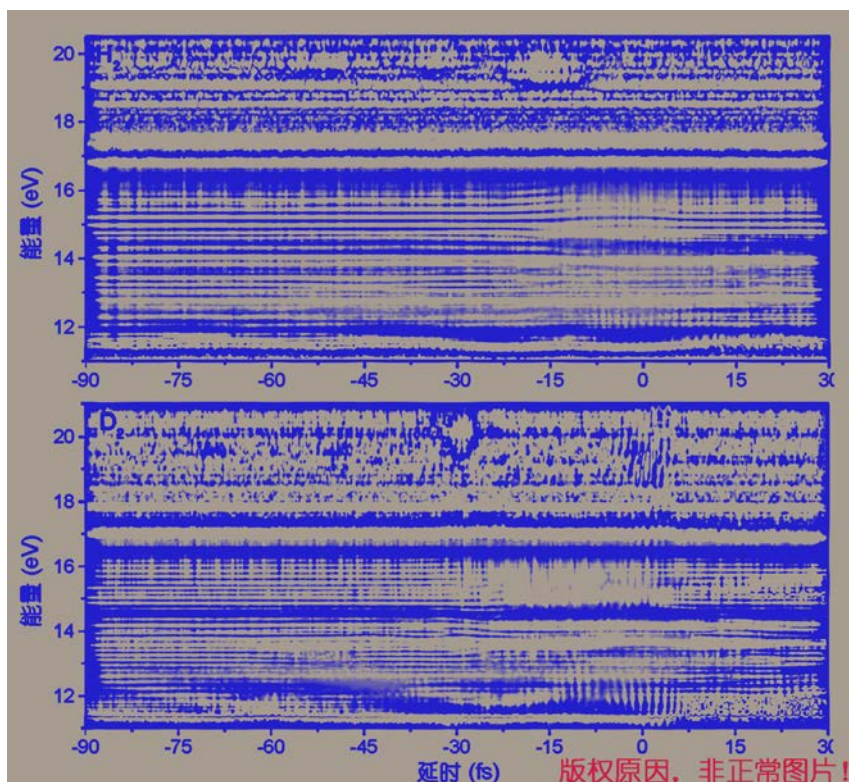


图 6.13 (a) H_2 及 (b) D_2 的透过率在较大负延时处的变化

H_2 和 D_2 分子透射谱在 20 eV 的峰值结构可能也和核的运动相关。通过扫描更大的负延时范围,我们发现这种透射峰值结构是周期重复的,如图6.13所示。而且重复的周期大概为 15–20 fs, 是典型的分子核运动的特征时间。

本节中我们介绍了 H_2 和 D_2 分子的瞬态吸收光谱的实验结果,观测到了交流斯塔克位移、量子干涉及激光诱导态等电子动力学过程,也发现了核运动的相关证据。但是,更准确的分析必须借助理论模型才能实现,到目前为止,还没有人报道可用于分子瞬态吸收光谱的模型。随着阿秒瞬态吸收光谱技术不断发展和日渐成熟,人们会逐渐建立起完善的理论体系,使阿秒瞬态吸收光谱技术成为揭示阿秒尺度上电子超快动力学的有力工具。

本章小结

本章介绍了氖原子的及氢分子阿秒瞬态吸收光谱实验。对氖原子实验结果的分析证实了基于单电子近似的理论模型在复杂体系的有效性。同时,我们首次利用分子体系进行了阿秒瞬态吸收光谱的实验,并观察到了电子及原子核的动力学过程。本章的实验对阿秒瞬态吸收光谱在复杂体系中的应用奠定了基础。

参考文献

- [1] Tarana M, Greene C H. Femtosecond transparency in the extreme-ultraviolet region [J]. *Physical Review A*. 2012, 85 (1): 013411.
- [2] Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon [J]. *Physical review letters*. 2010, 105 (14): 143002.
- [3] Goulielmakis E, Loh Z-H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. *Nature*. 2010, 466 (7307): 739–743.
- [4] Loh Z-H, Greene C H, Leone S R. Femtosecond induced transparency and absorption in the extreme ultraviolet by coherent coupling of the He 2s2p ($^1P^o$) and 2p²($^1S^e$) double excitation states with 800nm light [J]. *Chemical Physics*. 2008, 350 (1): 7–13.
- [5] Holler M, Schapper F, Gallmann L, et al. Attosecond electron wave-packet interference observed by transient absorption [J]. *Physical review letters*. 2011, 106 (12): 123601.
- [6] Chini M, Zhao B, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses [J]. *Physical Review Letters*. 2012, 109 (7): 073601.

-
-
- [7] Ranitovic P, Tong X, Hogle C, et al. Controlling the XUV transparency of helium using two-pathway quantum interference [J]. *Physical review letters*. 2011, 106 (19): 193008.
- [8] Baggesen J C, Lindroth E, Madsen L B. Theory of attosecond absorption spectroscopy in krypton [J]. *Physical Review A*. 2012, 85 (1): 013415.
- [9] Saloman E, Sansonetti C J. Wavelengths, energy level classifications, and energy levels for the spectrum of neutral neon [J]. *Journal of physical and chemical reference data*. 2004, 33 (4): 1113–1158.
- [10] Chu W-C, Lin C. Absorption and emission of single attosecond light pulses in an autoionizing gaseous medium dressed by a time-delayed control field [J]. *Physical Review A*. 2013, 87 (1): 013415.
- [11] Pfeiffer A N, Leone S R. Transmission of an isolated attosecond pulse in a strong-field dressed atom [J]. *Physical Review A*. 2012, 85 (5): 053422.
- [12] Pabst S, Sytcheva A, Moulet A, et al. Theory of attosecond transient-absorption spectroscopy of krypton for overlapping pump and probe pulses [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (6): 063411.
- [13] Wang X, Chini M, Cheng Y, et al. In situ calibration of an extreme ultraviolet spectrometer for attosecond transient absorption experiments [J]. *Applied optics*. 2013, 52 (3): 323–329.
- [14] Tong X, Hino K, Toshima N. Phase-dependent atomic ionization in few-cycle intense laser fields [J]. *Physical review A*. 2006, 74 (3): 031405.
- [15] Tong X, Toshima N. Controlling atomic structures and photoabsorption processes by an infrared laser [J]. *Physical review A*. 2010, 81 (6): 063403.
- [16] Wang X, Chini M, Cheng Y, et al. Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon [J]. *Physical Review A*. 2013, 87 (6): 063413.
- [17] Tong X-M, Chu S-I. Density-functional theory with optimized effective potential and self-interaction correction for ground states and autoionizing resonances [J]. *Physical Review A*. 1997, 55 (5): 3406.
- [18] Chini M, Wang X, Cheng Y, et al. Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light [J]. *Scientific reports*. 2013, 3: 1105.
- [19] Chen S, Bell M J, Beck A R, et al. Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium [J]. *Physical Review A*. 2012, 86 (6): 063408.

- [20] Sharp T. Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions [J]. [Atomic Data and Nuclear Data Tables](#). 1970, 2: 119–169.

第七章 结束语

阿秒瞬态吸收光谱技术自从 2010 年第一次被用于电子超快动力学测量以来得到广泛关注。它以实验装置简单、数据采集速度快及信噪比高等优点迅速成为阿秒脉冲的主要应用技术之一。本文围绕阿秒瞬态吸收光谱技术展开讨论。首先介绍了高次谐波产生的原理，并探讨利用相位匹配来提高飞秒脉冲到阿秒脉冲转化效率的机制。然后我们介绍了从阿秒脉冲串中选取单个阿秒脉冲的各种选通技术，以及单个阿秒脉冲的测量方法。在此基础上，我们进一步控制阿秒脉冲的色散，成功获得了 67 阿秒的超短脉冲。接下来，我们详细介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的实验装置，对其中 GDOG 技术的实验实现、延时的锁定与控制，高分辨极紫外谱仪的设计与标定等关键技术进行了详细讨论。同时，我们介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的基本理论。然后我们将阿秒瞬态吸收光谱技术应用于较为简单的氦原子，我们在实验中观察到了亚周期交流斯塔克效应、Autler-Townes 分裂、量子路径干涉、激光诱导态以及电离阈的亚周期变化等超快动力学过程，并借助理论模型对之进行了详细的讨论。最后，我们进行了复杂原子体系及简单分子体系的瞬态吸收光谱实验。在氦原子实验中，我们证明了单电子近似的瞬态吸收理论模型仍可适用于较为复杂的体系。同时我们通过改变入射脉冲的光谱范围成功关闭了量子干涉中的间接路径，展示了对超快动力学过程的操控能力。在氢原子的瞬态吸收谱中我们同时观测到了电子及原子核的动力学过程，但仍需要理论模型的进一步确认。

本文比较系统地介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术基本理论及实验技术，并把它分别应用于不同的原子分子体系，充分展示了瞬态吸收光谱技术在超快动力学探测上的能力。本文取得了主要成就及创新点如下：

1. 解释了利用氩气—氢气的气体池阵列增强高次谐波的准相位匹配机理。其中氢气的光电离截面较小，因而不会显著影响高次谐波产量，但通过调节其气压大小可以使不同氩气池产生的高次谐波重新相位匹配；
2. 产生并测得了 67 阿秒的超短阿秒脉冲。我们通过调节气压抑制截止区的谐波分量，并通过锆膜的色散特性补偿阿秒脉冲的固有啁啾，最终获得了接近傅里叶变换极限的超短阿秒脉冲。这是迄今为止，人们报道的最短的阿秒脉冲；
3. 搭建了一套实现阿秒瞬态吸收光谱技术的实验装置，并介绍了阿秒瞬态吸收光谱技术的基本理论。设计并搭建了高分辨极紫外谱仪，并提出了精确的原位标定方法，实验测得谱仪在 20-30 eV 能量范围内的分辨率高达 60 meV；

4. 进行了氦原子的瞬态吸收光谱实验。在实验中观察到了亚周期交流斯塔克效应、Autler-Townes 分裂、量子路径干涉、激光诱导态以及电离阈值的亚周期变化等超快动力学过程。实验中观察到了原子吸收谱在 $1/2$ 及 $1/4$ 个激光周期的超短时间尺度上的变化；
5. 进行了复杂原子体系（氦原子）及简单分子体系（氢分子）的瞬态吸收光谱实验。氦原子实验证明了单电子近似的瞬态吸收理论模型仍可适用于较为复杂的原子体系。同时我们在实验上关闭了量子干涉中的间接路径，展示了对超快动力学过程的操控能力。我们进行的氢分子实验是阿秒瞬态吸收光谱技术在分子体系中的首次尝试。

阿秒瞬态吸收光谱技术本质上是阿秒脉冲与飞秒脉冲在特定体系中的互相关过程，其测量的光谱是由待测体系对两束脉冲的响应在较长时间尺度上的积分决定的。对动力学过程的分析必须借助合适的理论模型，因此这种技术的超快时间分辨是有局限的。要突破这种局限就需要真正实现阿秒泵浦-阿秒探测技术。长时间以来，由于阿秒脉冲源的强度太弱，人们一直无法开展阿秒泵浦-阿秒探测的实验。一般来说，通过高次谐波过程，飞秒激光到阿秒脉冲的转化效率在 10^{-6} 左右。而主流的飞秒激光器只能输出毫焦量级的脉冲，导致阿秒脉冲的能量通常被限制在纳焦量级。因此，发展高功率飞秒激光器是提高阿秒脉冲能量的一种有效手段。目前，脉冲能量为 200 mJ、脉冲长度为 15 fs 的飞秒脉冲已成功被 GDOG 技术用于产生单个阿秒脉冲，能量高达 $0.2 \mu\text{J}$ 。另一方面，减小阿秒脉冲的长度能同时提高阿秒脉冲的峰值功率和泵浦-探测实验的分辨率。目前，人们能产生的最短阿秒脉冲为 67 阿秒，而很多原子分子内部的电子运动过程甚至小于 50 阿秒，因此，减小阿秒脉冲的长度仍是阿秒科学技术域的主要研究方向之一。随着飞秒激光器技术及单个阿秒产生技术的不断成熟，人们必将进一步提高阿秒脉冲的能量并减小阿秒脉冲长度，提高人们对原子分子内部超快动力学的探测能力。

致 谢

感谢我的导师袁建民教授。袁老师专业知识渊博、学术视野开阔，让我幸运地走入阿秒科学技术这一前沿研究领域；对待工作，袁老师治学态度严谨，工作积极热情，为我树立了科研的榜样；对待学生，袁老师授业且兼顾育人、严格而不失宽爱，让我在漫长艰辛的求学之路上倍感温暖。在我出国访学期间，袁老师给予了我莫大的信任、支持与鼓励。袁老师教给我的治学态度、科研方法及处世原则不仅是我博士学业得以完成的关键，也会使我以后的科研之路受益良多。

感谢我在外访学期间的指导老师常增虎教授。常老师博学多识，思维活跃，一直处于阿秒研究领域的最前沿。常老师十分注重对学生能力的培养，言传身教，授人以渔。即使对我这样的访问学生，常老师仍能一视同仁，无私传授。从专业知识到操作技能，从实验设计到结果分析常老师都给予了我具体细致的指导。在常老师实验室度过的三年留学生活是我博士期间美妙而难忘的经历。

感谢赵增秀教授和曾交龙教授给予我的教导和帮助。感谢张栋文师兄和吕治辉师兄在我进实验室之初对我的培训与指导，以及后来研究学习中给我的帮助与建议。

感谢我的实验搭档 Michael Chini 博士和程琰同学。本文中的大部分实验都是我们三人共同完成的。Michael 不仅教给了我很多实验技能，还在数据分析及论文写作中提供了大量帮助。与程琰同学的讨论也使我获益良多。感谢吴怡同学对我进行飞秒激光器知识的培训，他对飞秒激光器系统的搭建与维护是我们实验取得成功的基础。感谢 FAST 实验室的组员赵昆、张琦、王阳、Eric Cunningham、臧华平、李捷，他们对我们的研究提供了很多有意义的帮助和建议。

感谢孟超和杜习宇同学，我们最初在高次谐波实验上的尝试与讨论使我收获了许多宝贵的实验经验。感谢康冬冬师兄对我的指导和在我出外访学期间给予我的帮助。感谢教研室的所有老师和同学们，他们共同蕴造的勤奋刻苦、积极向上学习氛围使我能始终保持对科学的信仰和对求知的渴望。

感谢我的父母对我无微不至的关爱。感谢我的妻子黄节山对我博士学业的鼓励与支持，对我忙于实验的宽容与理解，尤其是在我出国留学期间所做出的牺牲与让步。

作者在学期间取得的学术成果

- [1] **Xiaowei Wang**, Michael Chini, Qi Zhang, K. Zhao, Yi Wu, Di Zhao, Dmitry A. Telnov, Shih-I Chu, and Zenghu Chang, "Mechanism of quasi-phase-matching in a dual-gas multijet array" *Physical Review A*, 2012, 86(2): 021802(R)
- [2] **Xiaowei Wang**, Michael Chini, Yan Cheng, Yi Wu, and Zenghu Chang, "In situ calibration of an extreme ultraviolet spectrometer for attosecond transient absorption experiments", *Applied Optics*, 2013, 52(3): 323-329
- [3] **Xiaowei Wang**, Michael Chini, Yan Cheng, Yi Wu, Xiao-Min Tong, and Zenghu Chang, "Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon", *Physical Review A*, 2013, 87(6): 063413,
- [4] Michael Chini, **Xiaowei Wang**, Yan Cheng, Yi Wu, Di Zhao, Dmitry A. Telnov, Shih-I Chu, Zenghu Chang, "Sub-cycle Oscillations in Virtual States Brought to Light", *Scientific Reports*, 2013, 3: 1105
- [5] Kun Zhao, Qi Zhang, Michael Chini, Yi Wu, **Xiaowei Wang**, and Zenghu Chang, "Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch", *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3891-3893
- [6] Yi Wu, Eric Cunningham, Jie Li, Huaping Zang, Michael Chini, **Xiaowei Wang**, Yang Wang, Kun Zhao, and Zenghu Chang, "Generation of High-Flux Attosecond Extreme Ultraviolet Continuum with a 10 Terawatt Laser", *Applied Physics Letter*, 2013, 102(20): 201105
- [7] Michael Chini, **Xiaowei Wang**, Yan Cheng, He Wang, Yi Wu, Eric Cunningham, Peng-Cheng Li, John Heslar, Dmitry A. Telnov, Shih-I Chu, and Zenghu Chang, "Coherent Phase-Matched VUV Generation by Field-Controlled Bound States", submitted to *Nature Photonics*, 2013
- [8] **Xiaowei Wang**, Michael Chini, Yan Cheng, Yi Wu, Xiao-Min Tong, and Zenghu Chang, "Subcycle laser control and quantum interferences in attosecond photoabsorption of neon", *Frontiers in Optics 2013/Laser Science XXIX conference*, 2013, LTh11
- [9] Michael Chini, **Xiaowei Wang**, Yan Cheng, Yi Wu, and Zenghu Chang, "Probing attosecond electron dynamics in atoms", *Photonics Conference*, 2012, 622-623