



国家出版基金项目
NATIONAL PUBLICATION FOUNDATION

“十二五”国家重点出版规划项目

现代激光技术及应用丛书

阿秒激光技术

曾志男 李儒新 编著

Attosecond Laser Technology



国防工业出版社
National Defense Industry Press



“十二五”国家重点出版规划项目

/现代激光技术及应用丛书/

阿秒激光技术

曾志男 李儒新 编著

国防工业出版社

· 北京 ·

内 容 简 介

自 2001 年产生第一个亚飞秒脉冲以来,其产生和应用被深入广泛研究。本书主要介绍强场物理领域亚飞秒与阿秒激光相关的基础知识和最新发展动态,介绍飞秒强激光与原子分子的相互作用,高次谐波光源的产生与应用,亚飞秒与阿秒激光的产生、测量及应用,以及与这些研究相关的飞秒激光技术及其发展。

本科生可以通过阅读本书对强场物理领域有一定的了解,研究生及其他科研工作者通过本书的阅读可以深入了解亚飞秒及阿秒激光的技术和应用。

图书在版编目 (CIP) 数据

阿秒激光技术/曾志男,李儒新编著. —北京:国防工业出版社, 2016. 7

(现代激光技术及应用丛书)

ISBN 978 - 7 - 118 - 10527 - 8

I. ①阿… II. ①曾… ②李… III. ①激光技术—研究 IV. ①TN24

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2016)第 024252 号

※

国防工业出版社出版发行

(北京市海淀区紫竹院南路 23 号 邮政编码 100048)

北京嘉恒彩色印刷有限责任公司

新华书店经售

*

开本 710 × 1000 1/16 印张 15 字数 252 千字

2016 年 7 月第 1 版第 1 次印刷 印数 1—2500 册 定价 68.00 元

(本书如有印装错误,我社负责调换)

国防书店:(010)88540777

发行邮购:(010)88540776

发行传真:(010)88540755

发行业务:(010)88540717

丛书学术委员会 (按姓氏拼音排序)

主 任	金国藩	周炳琨		
副主任	范滇元	龚知本	姜文汉	吕跃广
	桑凤亭	王立军	徐滨士	许祖彦
	赵伊君	周寿桓		
委 员	何文忠	李儒新	刘泽金	唐 淳
	王清月	王英俭	张雨东	赵 卫

丛书编辑委员会 (按姓氏拼音排序)

主 任	周寿桓			
副主任	何文忠	李儒新	刘泽金	王清月
	王英俭	虞 钢	张雨东	赵 卫
委 员	陈卫标	冯国英	高春清	郭 弘
	陆启生	马 晶	沈德元	谭峭峰
	邢海鹰	阎吉祥	曾志男	张 凯
	赵长明			

世界上第一台激光器于1960年诞生在美国,紧接着我国也于1961年研制出第一台国产激光器。激光的重要特性(亮度高、方向性强、单色性好、相干性好)决定了它五十多年来在技术与应用方面迅猛发展,并与多个学科相结合形成多个应用技术领域,比如光电技术、激光医疗与光子生物学、激光制造技术、激光检测与计量技术、激光全息技术、激光光谱分析技术、非线性光学、超快激光学、激光化学、量子光学、激光雷达、激光制导、激光同位素分离、激光可控核聚变、激光武器等。这些交叉技术与新的学科的出现,大大推动了传统产业和新兴产业的发展。可以说,激光技术是20世纪最具革命性的科技成果之一。我国也非常重视激光技术的发展,在《国家中长期科学与技术发展规划纲要(2006—2020年)》中,激光技术被列为八大前沿技术之一。

近些年来,我国在激光技术理论创新和学科发展方面取得了很多进展,在激光技术相关前沿领域取得了丰硕的科研成果,在激光技术应用方面取得了长足的进步。为了更好地推动激光技术的进一步发展,促进激光技术的应用,国防工业出版社策划组织编写出版了这套丛书。策划伊始,定位即非常明确,要“凝聚原创成果,体现国家水平”。为此,专门组织成立了丛书的编辑委员会,为确保丛书的学术质量,又成立了丛书的学术委员会,这两个委员会的成员有所交叉,一部分人是几十年在激光技术领域从事研究与教学的老专家,一部分是长期在一线从事激光技术与应用研究的中年专家;编辑委员会成员主要以丛书各分册的第一作者为主。周寿桓院士为编辑委员会主任,我们两位被聘为学术委员会主任。为达到丛书的出版目的,2012年2月23日两个委员会一起在成都召开了工作会议,绝大部分委员都参加了会议。会上大家进行了充分讨论,确定丛书书目、丛书特色、丛书架构、内容选取、作者选定、写作与出版计划等等,丛书的编写工作从那时就正式地开展起来了。

历时四年至今日,丛书已大部分编写完成。其间两个委员会做了大量的工作,又召开了多次会议,对部分书目及作者进行了调整。组织两个委员会的委员对编写大纲和书稿进行了多次审查,聘请专家对每一本书稿进行了审稿。

总体来说,丛书达到了预期的目的。丛书先后被评为国家“十二五”重点出

版规划项目和国家出版基金资助项目。丛书本身具有鲜明特色：一)丛书在内容上分三个部分，激光器、激光传输与控制、激光技术的应用，整体内容的选取侧重高功率高能激光技术及其应用；二)丛书的写法注重了系统性，为方便读者阅读，采用了理论—技术—应用的编写体系；三)丛书的成书基础好，是相关专家研究成果的总结和提炼，包括国家的各类基金项目，如973项目、863项目、国家自然科学基金项目、国防重点工程和预研项目等，书中介绍的很多理论成果、仪器设备、技术应用获得了国家发明奖和国家科技进步奖等众多奖项；四)丛书作者均来自于国内具有代表性的从事激光技术研究的科研院所和高等院校，包括国家、中科院、教育部的重点实验室以及创新团队等，这些单位承担了我国激光技术研究领域的绝大部分重大的科研项目，取得了丰硕的成果，有的成果创造了多项国际纪录，有的属国际首创，发表了大量高水平的具有国际影响力的学术论文，代表了国内激光技术研究的最高水平。特别是这些作者本身大都从事研究工作几十年，积累了丰富的研究经验，丛书中不仅有科研成果的凝练升华，还有着大量作者科研工作的方法、思路和心得体会。

综上所述，相信丛书的出版会对今后激光技术的研究和应用产生积极的重要作用。

感谢丛书两个委员会的各位委员、各位作者对丛书出版所做的奉献，同时也感谢多位院士在丛书策划、立项、审稿过程中给予的支持和帮助！

丛书起点高、内容新、覆盖面广、写作要求严，编写及组织工作难度大，作为丛书的学术委员会主任，很高兴看到丛书的出版，欣然写下这段文字，是为序，亦为总的前言。

金国藩 周炳琨

2015年3月

随着科学技术的发展,人们对物质世界的了解越来越深入。在构筑万物基础的微观世界,生物、化学和物理的界限正在逐步消失,因为其根本都是来自电子运动,如分子内的电子运动负责生物信息传递、改变化学产物以及生物系统功能,信息处理的速度则可以通过采用更小的纳米电路来提高等。这些电子运动的时间尺度从几十阿秒(10^{-18} s)到几十飞秒(10^{-15} s),对这些电子运动的了解是解释所有生物、化学和物理现象的基础。阿秒量级的超高时间分辨率与原子尺度(10^{-8} cm)的超高空间分辨率相结合将可能实现人类了解和把握原子-亚原子微观世界中极端超快现象的梦想。同时,电子态的超快相干控制是 21 世纪国际物理学前沿领域之一,也是量子操控与新材料的重要研究方向之一。由量子力学理论可知, $\Delta E \cdot \Delta t \sim h$,也就是说,当电子能量状态变化达到 3.83 eV 以上时,电子运动周期就可能在 1 fs 以下,进入阿秒的时间尺度。

1987 年,气体高次谐波的发现为相干 X 射线光源的研究注入了一股新鲜血液,世界上各个著名的实验室纷纷加入到气体高次谐波辐射研究的队伍中,使气体高次谐波辐射成为强场激光物理领域最激动人心的研究课题之一。除了获得相干的、波长连续可调谐的、脉冲持续时间极短的 XUV 和软 X 射线源外,气体高次谐波是突破飞秒时间极限、获得阿秒时间尺度相干脉冲的首选光源。气体高次谐波由于辐射谱呈现超宽的平台区,可以获得亚飞秒甚至阿秒的 XUV 脉冲,可将超快过程的测量范围扩展到各种物质形态中电子的运动过程,如复杂分子中的电荷跃迁、分子中价电子的运动状态等。基于气体高次谐波产生的阿秒脉冲,阿秒科学得到了飞速发展。阿秒科学是测量技术的革命,在人类历史上,它第一次提供了超快电子运动的直接时域观测。

本书较全面地介绍了阿秒科学领域的基础知识和最新进展,以及作者在该领域从事的课题研究和主要成果。全书内容分为 4 章,分别是基本原理、阿秒激光的产生与测量、阿秒激光的应用、相关的驱动激光技术。各章的主要内容如

下。第1章较系统地介绍了阿秒激光的历史和理论基础,从气体高次谐波的发现到其理论模型的建立、发展,以及阿秒激光的理论基础等;第2章主要介绍了阿秒激光产生和表征的相关技术,包括各种产生方法、超短脉冲的测量方法等;第3章介绍了阿秒激光在各个领域的应用,以及各种超快电子动力学过程的研究技术和方法;第4章介绍与阿秒激光技术相关的驱动激光技术。阿秒激光产生及应用是非常高精密的实验技术,它也引领了相关激光技术的不断发展。

本书在编写过程中参考了有关的专著、网络和论文,在此对相关作者表示衷心的感谢。由于作者水平有限,书中难免存在不足之处,望各位专家与读者不吝赐教。

作者
2016年1月

第1章 基本原理

1.1	强场相互作用	001
1.1.1	微扰非线性光学	002
1.1.2	强场非线性光学	003
1.1.3	电离机制	005
1.2	气体高次谐波概述	007
1.2.1	气体高次谐波产生的理论模型	007
1.2.2	气体高次谐波产生过程的数值计算方法	026
1.2.3	气体高次谐波的相干性	030
1.3	气体高次谐波的应用	037
1.3.1	相干软 X 射线显微	038
1.3.2	超快复合成像	040
1.3.3	超快飞秒 X 射线光源	044
1.4	国内外研究进展	049
1.4.1	气体高次谐波实验装置	049
1.4.2	气体高次谐波的波长	052
1.4.3	气体高次谐波的产率	056
1.4.4	气体高次谐波产生过程的相干控制	063
1.5	附录	072
1.5.1	原子单位制	072
1.5.2	超短激光脉冲的数学描述	073
1.5.3	惰性气体的折射率和色散	076
1.5.4	几种常用气体对 X 射线的透过率	076
1.5.5	一些金属滤膜的性质	077
1.5.6	几种常见金属反射镜	078
1.5.7	超短脉冲传播方程的推导	078
1.5.8	平焦场光栅光谱仪	079
1.5.9	时间频率分析	079
1.5.10	虚时间演化	081
1.5.11	傅里叶变换方法计算动能项	081
	参考文献	082

第2章 阿秒激光产生与测量

2.1 阿秒激光概述	089
2.2 阿秒激光的产生方法	096
2.2.1 少周期激光脉冲泵浦激光方案	096
2.2.2 偏振时间门方案	098
2.2.3 DOG 和 GDOG	108
2.2.4 双色场方案	109
2.2.5 其他方案	110
2.3 阿秒激光的测量原理	114
2.3.1 阿秒脉冲的自相关测量	115
2.3.2 阿秒脉冲的互相关测量	118
2.4 国内外研究进展	132
参考文献	141

第3章 阿秒激光的应用

3.1 阿秒激光应用概述	146
3.2 阿秒脉冲泵浦-探测技术	147
3.2.1 超快泵浦-探测研究电子动力学过程	147
3.2.2 超快四维成像技术	155
3.3 阿秒脉冲在不同领域的应用前景	157
参考文献	169

第4章 相关的驱动激光技术

4.1 啁啾脉冲放大技术简介	172
4.2 高强度少周期激光脉冲	174
4.2.1 锁模超短脉冲	174
4.2.2 高能量少周期激光脉冲的产生	177
4.2.3 秒激光脉冲脉宽测量技术	185
4.3 载波包络相位稳定技术	190
4.3.1 载波包络相位的概念	190
4.3.2 载波包络相位的测量	193
4.3.3 载波包络相位的稳定	197
4.4 OPA 技术和中红外激光	199
参考文献	203

1.1 强场相互作用

从 1960 年第一台红宝石激光器产生以来直到现在的半个多世纪的时间里,激光技术已经有了飞速的发展。激光调 Q 技术产生了兆瓦(10^6 W , MW)纳秒(10^{-9} s , ns)量级的激光脉冲输出,激光锁模技术产生了吉瓦(10^9 W , GW)皮秒(10^{-12} s , ps)量级的激光脉冲输出。如图 1-1 所示,激光脉冲宽度从最早的毫秒、调 Q 技术的纳秒、锁模技术的皮秒,直到小于 5 fs ^[1]。1985 年, Mourou 等人发明的啁啾脉冲放大技术(Chirped Pulse Amplification, CPA)使停滞了近 20 年的激光脉冲功率得到了突破,可聚焦功率密度超过了 $10^{15}\text{ W}/\text{cm}^2$ 量级。目前,在小型台式化激光系统上,近红外超短激光脉冲的脉冲宽度最短可达到光周期量级($<5\text{ fs}$),可聚焦功率密度最高可达到约 $10^{22}\text{ W}/\text{cm}^2$ 量级,这为光与物质相互作用研究提供了前所未有的技术支持和保障,为光与物质相互作用新现象、新规律的发现和探索提供了可能。

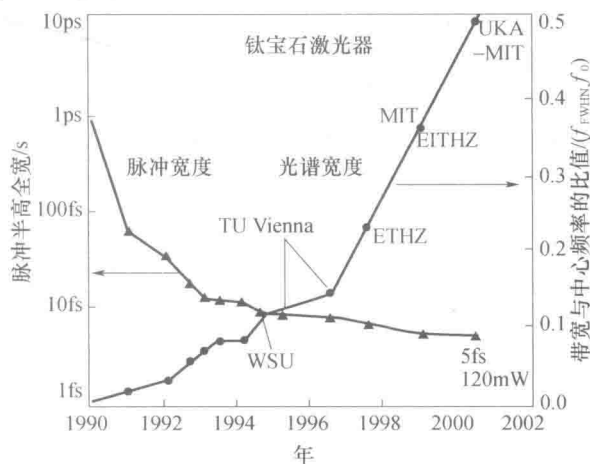


图 1-1 20 世纪 90 年代激光脉冲宽度随时间的推进

由于目前超短激光脉冲的可聚焦功率密度最高可达到约 10^{22} W/cm^2 量级,而氢原子内部基态玻尔轨道上库仑场强所对应的功率密度为 $3.5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$,因此激光束聚焦后可达到的峰值电场强度已经远远超过了氢原子内部库仑场强,当如此强的激光场与物质发生相互作用时,会出现一系列用传统的微扰论非线性光学所无法解释的物理现象。

物质在强激光脉冲辐照下的非线性响应一般通过其在激光光场中感应极化的非线性关系来体现。在不同的激光电场强度下,非线性极化系数可以来自完全不同的物理过程。

(1) 在较低强度激光场照射下,由于激光场电场强度比原子内静电场(库仑场)弱很多,因此在非共振状态下只能轻微改变原子中电子的量子态。电子能级的移动非常小,正比于 E^2 ,即动态斯塔克位移(ac Stark Shift)。大部分原子仍然保留在基态,扩展的电子波函数也还在玻尔半径附近,这种非线性相互作用可以采用微扰论的方法解决。这方面的相互作用自从激光问世后就开展了广泛的研究,其涉及的内容可以参考传统的非线性光学(Nonlinear Optics)方面的书籍。

(2) 当激光场电场强度可以与原子内的库仑场强相比拟或者更高时,大量电子可以在极短时间内从束缚态电离出来(隧穿电离或过势垒电离),电子波包在激光场中不断颤动,其颤动的幅度可能比玻尔半径高几个量级,每个光周期内电子的平均动能超过了电子的束缚能(电离能) I_p 。这时候的参数范围对应于强场非线性光学领域,也称为非微扰非线性光学,此时,原子的极化主要来自电离过程,而束缚态电子的贡献则基本上可以忽略。

(3) 电子一旦电离以后,其在激光场中的运动基本上可以由牛顿方程描述,原子势(库仑场)的作用基本上可以忽略。进一步地,当激光脉冲中的磁场在电子运动中成为一个很重要的角色时,电子的颤动能与其静止质量所对应的能量可相比拟,这预示着进入了相对论非线性光学。

在强激光场与原子/分子相互作用研究中,一个重要的近似就是强场近似(Strong Field Approximation, SFA)。强场近似是指在电子从原子/分子中电离出来以后,其在激光场中的后续运动可以忽略原子/分子核库仑势场的影响,只考虑强激光脉冲电场的作用。

1.1.1 微扰非线性光学

一般来说,介质对强激光脉冲电场的非线性响应可以以极化强度的形式表示为

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + P_{nl} \quad (1-1)$$

式中: P 为极化强度,右边第一项为线性响应, $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} (\text{A} \cdot \text{s})/(\text{V} \cdot \text{m})$; P_{nl} 为非线性极化强度,在电场强度比较低的情况下可以展开写成

$$P_{\text{nl}} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \varepsilon_0 \chi^{(4)} E^4 + \cdots \quad (1-2)$$

式中: $\chi^{(k)}$ 为 k 阶极化率。这个描述方法一般在时间尺度短到几飞秒的情况下仍然是正确的, 因为介质的极化起源于电子运动, 其响应时间在 $1/\Delta$ 的量级, 这里 $\Delta = |\omega_{ik} - \omega_0|$, ω_{ik} 对应于从初始量子态 i 到某个非共振激发态 k 的跃迁频率, ω_0 则是激光载波频率。一般而言, 原子基态到最低的激发态之间的跃迁频率都是远高于可见和红外波段的, 因此 $1/\Delta$ 的典型值一般都是小于 1fs 的。但是在分子和凝聚态物质中, 核运动也会对光场感应极化有所贡献, 这个贡献的响应时间有可能在几百飞秒到几皮秒, 导致对 P_{nl} 的描述需要更复杂的形式。而且, 极化响应一般是各向异性的, 这使 $\chi^{(k)}$ 成了一个 k 阶张量。

如果忽略束缚态到自由态之间的跃迁, 量子力学给出的线性和非线性极化强度之间的关系可以如下简化, 即

$$\frac{\chi^{(k+1)} E^{k+1}}{\chi^{(k)} E^k} \approx \frac{\mu_{ik} E}{\hbar \Delta} \approx \frac{e E a_B}{\hbar \Delta} = \alpha_{\text{bb}} \quad (1-3)$$

式中: E 为电场强度; $\hbar = h/2\pi$, h 为普朗克常量; a_B 为玻尔半径; e 为电子电荷。当 $\alpha_{\text{bb}} \ll 1$ 时, 束缚态之间的跃迁将是非常弱的, 非线性极化强度就可以用上文的展开式(1-2)描述。

对于束缚态到自由态之间的跃迁, Keldysh 的分析给出了如下结果, 即

$$\frac{1}{\gamma} = \frac{eE}{\omega_0 \sqrt{2mI_p}} = \frac{eE a_B}{\hbar \omega_0} = \alpha_{\text{bf}} \quad (1-4)$$

式中: m 是电子静止质量; e 是电子电荷; $I_p \gg \hbar \omega_0$, 为电子束缚能(电离能); 玻尔半径 $a_B = \hbar \sqrt{2mI_p}$ 。

因此, 微扰非线性光学领域可以定义成 $\alpha_{\text{bf}}, \alpha_{\text{bb}} \ll 1$ 。

1.1.2 强场非线性光学

在 $\gamma^{-1} > 1$ 时, 激光电场将会强烈地抑制原子库仑势, 电子波函数会在不到一个激光周期的时间内从原子势垒中隧穿出来, 如图 1-2 所示。电子电离速率与瞬态电场强度和基态能级(电子电离能)有关, 可以用“准静态”电离速率 $w(E)$ 描述, 这样的电离过程称为隧穿电离。

强场条件下, 大部分弱束缚电子对应的“准静态”势场, 其中一侧(图 1-2 中右侧)由于瞬态激光电场的作用被压制, 形成一个有限宽度的势垒, 使原子中的电子可以量子隧穿效应通过势垒。图中电子可以以近似零速度隧穿出原子势垒在 x_0 的位置出现, 然后在激光场中作周期运动, 其第一次漂移的最大位移用 a_w 表示。采用经典牛顿力学描述电离以后的电子波包(质心)的运动, 并忽略掉离子库仑场的作用(强场近似), 可以积分得到线偏振激光场中电子的颤动振幅 $a_w \propto eE_0/m\omega_0^2$ 以及周期平均的电子颤动动能 $U_p = e^2 E_0^2 / 4m\omega_0^2$, 即有质动力能,

E_0 是激光脉冲峰值电场强度。通过对图 1-2 瞬时势能曲线的分析可以得到电子从势垒中隧穿出来的位置 $x_0 \approx I_p/eE_0$ 。Keldysh 参数可以表示成 $1/\gamma^2 = a_w/2x_0 = 2U_p/I_p$, 这意味着, 在强场隧穿电离情况下 (即 $\gamma^{-1} > 1$), 自由电子在小于一个光周期的时间内就能获得很大的动能。此时, 激光电场作用占主要地位, 离子静态库仑场的影响在电子电离以后就变得非常小。

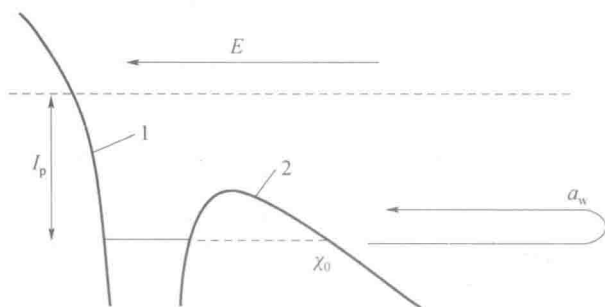


图 1-2 原子库仑势垒与瞬时激光电场合成的瞬时势能曲线 (曲线 1, 2)
E—瞬时激光电场; I_p —原子电离能

当时间尺度在激光脉冲的光周期量级 (可见光和近红外光) 时, 经典力学对电子波包质心运动的描述是足够准确的, 因为一般情况下电子波包的扩散速度均小于 1nm/fs 。因此, 相对于电子运动在强激光场中的颤动振幅来说, 电子波包的尺寸是非常小的。事实上, 结合从量子力学得到的准静态隧穿电离率公式 $w(E)$, 并假设电子以零初始速度从原子/分子中电离出来, 经典牛顿力学对电子波包质心运动的求解可以相当精确地描述许多强场物理现象, 如阈上电离 (Above Threshold Ionization, ATI)、气体高次谐波产生 (High Order Harmonic Generation, HHG) 等。

在经典电动力学中, 介质的非线性极化过程可以用以下公式描述, 即

$$P_{\text{nl}} = en_e(t)x \quad (1-5a)$$

$$\dot{P} \approx \dot{P}_{\text{nl}} = J_{\text{free}} = en_e\dot{x} + en_e x_0 \quad (1-5b)$$

$$v_0 \approx 0 \quad (1-5c)$$

$$m\ddot{x} = eE \quad (1-5d)$$

综合上述公式, 可以得到以下描述强光场相互作用中非线性极化强度的表达式, 即

$$\ddot{P}_{\text{nl}}(t) = \frac{e^2}{m}n_e(t)E(t) + I_p \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{n_e(t)}{E(t)} \right) \quad (1-6)$$

式中: $n_e(t) = n_a(1 - \exp[-\int_{-\infty}^t dt' w(E(t'))])$, 为随时间变化的自由电子密度; n_a 为初始原子密度; $w(E)$ 为隧穿电离的瞬时电离速率。

1.1.3 电离机制

在描述强激光场与介质相互作用过程中,电子电离是非常重要的物理过程。不同强度的激光场与原子相互作用时,其电离过程是不一样的。如图 1-3 所示,当激光强度低于 10^{14} W/cm^2 时,原子的主要电离机制是多光子电离(Multiphoton Ionization, MI)(图 1-3(a))。此时,外加电场强度较低,其对原子势能曲线的影响很小,电子(图中阴影部分)只能同时吸收多个光子才能获得足够的能量离开原子。在多光子电离的过程中,原子的能级结构对多光子电离的影响超过对隧穿电离和过势垒电离的影响。随着激光光强的提高,隧穿电离机制将会出现。如图 1-3(b)所示,当激光强度提高时,在瞬时电场形成的势能曲线(图中虚线)影响下,原子势能曲线开始变形,某一侧(图中右侧)的势能曲线被严重压制,形成一个有限宽度的势垒。根据量子力学效应,电子可以通过隧穿过程穿越势垒,隧穿电离逐渐开始。以电离能为 I_p 的原子为例,由于此时电子的能量为 $-I_p$ 仍然低于原子势垒高度,经典力学中是不允许发生电离的,但是量子力学允许电子以一定的概率通过势垒隧穿效应从原子中电离出来,使原子发生电离,这就是所谓的隧穿电离(Tunneling Ionization, TI)。当激光强度提高到一定程度时,原子的电离将以隧穿电离为主。当激光强度进一步提高,使原子的库仑势发生强烈扭曲,以致扭曲后的势垒最高点低于 $-I_p$ 时,该束缚态上的电子将有很大概率直接越过势垒运动到无限远,使原子发生电离。这时,原子的电离速率很大,电离概率接近于 100%,这种电离机制称为过势垒电离^[2](Over The Barrier Ionization, OTBI)。

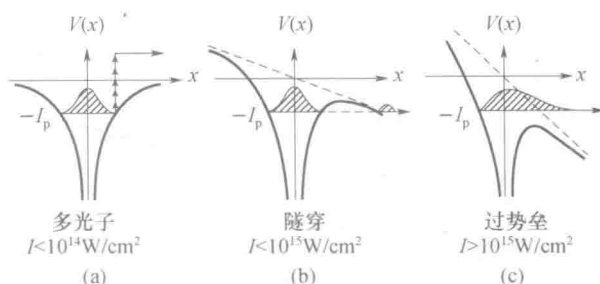


图 1-3 电子电离过程的三种可能机制^[2]

理论上,往往用 Keldysh 参数^[3]来区分不同的电离机制,即

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (1-7)$$

式中: I_p 为电子的电离能; U_p 为激光电场强度对应的有质动力能,在原子单位制下可以写成 $E_0^2/4\omega_0^2$, E_0 即激光电场强度, ω_0 为激光振荡的角频率。

γ 的物理意义可以粗略地看作激光场作用下形成的原子库仑场的势垒宽度

或电子穿越势垒所需的时间(以激光场的振荡周期为单位),因为如果将 U_p 的表达式代入表达式(1-7),就可以得到

$$\gamma = \frac{\omega_0}{E_0} \sqrt{2I_p} = \frac{2\pi\sqrt{2I_p}}{T_0 E_0} = \frac{\tau}{T_0} \quad (1-8)$$

上述表达式(1-8)中的 τ 就是定义的隧穿时间,即电子穿越势垒所需要的时间。当 $\gamma \gg 1$ 时,说明激光的电场强度远小于原子的库仑场强,电子电离主要通过多光子电离的方式进行。当 $\gamma \ll 1$ 时,则说明激光的电场强度已大大超过了原子的库仑场强,势垒很窄甚至被完全抑制,此时,电子电离主要通过隧穿电离或过势垒电离的方式进行。

(1) 多光子电离。多光子电离是指原子中的电子通过同时吸收所需最少数目的多个光子能量而从束缚态跃迁到连续态的过程。在激光强度较低并且脉冲较长的条件下, Fabre 等^[4,5] 在 20 世纪 70 年代用低阶微扰理论(Lowest-Order Perturbation Theory, LOPT)给出了多光子电离的电离速率为 $\Gamma_n = \sigma_n I^n$, 其中 n 为电子电离所必须吸收的最少光子数, σ_n 为广义的电离截面, I 为激光光强。1979 年, Kruit 等^[6] 发现随着激光光强的进一步提高, 电子可以同时吸收多于其电离所需的最少数目的光子而电离, 这就是阈上电离现象(ATI)^[7], 其电离速率为 $\Gamma_{n+s} \sim I^{n+s}$, 其中 $(n+s)$ 为吸收的光子数, I 为激光光强。由于电离速率不随电场振荡变化(随时间缓慢变化), 因此在长脉冲情况下总的电离率基本上与时间呈线性关系^[8,9]。

(2) 隧穿电离。如果激光光强足够高并且激光频率很低, 在准静态近似下, 此时, 处于激光场中的原子, 其势能曲线被激光电场压制而发生严重畸变, 即原子的库仑势垒 $V(r)$ 与激光电场形成的势场(一般写成 $eE \cdot r$) 在其偏振方向上相叠加而形成了一个合成势垒。随着激光光强的提高, 原子库仑势垒逐渐被压低, 使得电子可能通过隧道效应穿过势垒而发生电离, 这就是隧穿电离现象^[2] (图 1-3(b))。在这种准静态近似下, Ammosov、Delone、Krainov 三人给出了著名的 ADK 公式用于计算隧穿电离率^[10], 在线偏振激光场下其表达式为

$$W_{\text{ADK}} = C_{n^*}^2 f(l, m) \frac{Z^2}{2n^{*2}} \sqrt{\frac{3E(t)n^{*3}}{\pi Z^3}} \left(\frac{2Z^3}{E(t)n^{*3}} \right)^{2n^* - |m| - 1} \exp\left(- \frac{2Z^3}{3n^{*3}E(t)} \right) \quad (1-9)$$

式中: $C_{n^*} = (2e/n^*)^{n^*} (2\pi n^*)^{-1/2}$; $f(l, m) = (2l+1)(l+|m|)! / (2^{|m|} |m|! (l-|m|)!)$; $E(t)$ 为激光的电场分量; n^* 为有效量子数 $Z/(2I_p)^{1/2}$; $e = 2.71828 \cdots$ 为自然常数; l 和 m 则分别为角动量量子数和磁量子数; Z 为原子电离后的离子电荷数。在圆偏振激光场情况下, 上述表达式需要再乘上 $(\pi Z^3/3E(t)n^{*3})^{1/2}$ 。很显然, 隧穿电离机制的电离速率随时间的变化是高度非线性的。上述 ADK 公式的适用条件是 $\gamma < 0.5$, 否则, 其表达式前面具有更复杂的系数。

(3) 过势垒电离。根据 Ammosov 等^[10] 的理论, 隧穿电离的电离速率与激光

电场的瞬时值有关。随着激光光强的进一步增加,原子的库仑势场可能被完全抑制,使势垒最高点降低到等于或小于原子中电子的基态能量以下时,基态电子就能直接越过它而成为自由电子,这就是过势垒电离机制(图1-3(c))。相应于临界场强的激光光强可以由下式来估计,即

$$I_{th} = \frac{4 \times 10^9 I_p^4}{Z^2} (\text{W/cm}^2) \quad (1-10)$$

式中: I_p 为原子的电离能,单位为电子伏(eV); Z 为原子中电子电离后的离子电荷数。

对于过势垒电离机制的电离速率,目前还没有一个简单的模型来描述,一般只有通过数值求解含时薛定谔方程来了解电离率变化的具体形式,但是总的电离率随时间的变化也是高度非线性的。

1.2 气体高次谐波概述

目前,在台式化小型激光系统上,近红外超短激光脉冲的脉冲宽度最短可达到光周期量级,可聚焦功率密度最高可达到 10^{22} W/cm^2 量级,而氢原子内部基态玻尔轨道上的库仑场强所对应的功率密度只有 $3.5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$,因此激光束聚焦后可达到的电场强度已经远远超过了氢原子内部库仑场强。因此,当原子与如此强的激光电场相互作用时,会出现一系列用传统的微扰理论所无法解释的物理现象,如阈上电离(Above Threshold Ionization, ATI)、高次谐波产生(High Order Harmonic Generation, HHG)等。1987年,McPherson等人利用亚皮秒 KrF 激光(248nm)与惰性气体相互作用首次获得气体高次谐波辐射^[11],气体高次谐波产生在理论、实验和应用方面都取得了巨大的进展。下面将对强激光场情况下气体高次谐波产生相关的基本概念、理论和研究现状作一个简单介绍。

1.2.1 气体高次谐波产生的理论模型

气体高次谐波一般是由强激光脉冲和气体介质相互作用产生,这种现象在1987年被首次发现(图1-4)^[11],可以看到产生效率在两个不同区域的下降斜率不同,第一个快速下降的区域对应于传统的微扰论非线性光学,而随后一个缓慢下降的区域即气体高次谐波平台区,其中13次谐波(65eV)的产生效率约为 2×10^{-11} 。一般在气体介质中产生高次谐波所需的激光光强是 $10^{13} \sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$,图1-5所示是一张典型的气体高次谐波谱图^[12],包含了气体高次谐波谱的光谱形状基本特征(纵坐标为对数坐标),在低级次处高次谐波强度快速下降,对应于传统的微扰非线性光学区域,随后是一个强度变化相对比较平缓的平台区,在 $I_p + 3.17 U_p$ 附近高次谐波强度再次急剧下降,对应于高次谐波截止区。事实