

申请上海交通大学博士学位论文

超短激光脉冲驱动产生高次谐波的理论研究

论文作者 _____

学 号 _____

导 师 _____

专 业 _____ 物理学类

答辩日期 _____ 2017 年 12 月 01 日

Submitted in total fulfillment of the requirements for the degree of Doctor
in Physics

Theoretical Study of High Harmonic Generation Driven by Ultrashort Laser Pulses

DEPARTMENT OF PHYSICS AND ASTRONOMY
SHANGHAI JIAO TONG UNIVERSITY
SHANGHAI, P. R. CHINA

Dec. 1st, 2017

超短激光脉冲驱动产生高次谐波的理论研究

摘要

随着激光科学技术的快速发展,获得超强超短激光脉冲的技术变得越来越成熟。超强超短激光脉冲与物质发生相互作用,会出现微扰论无法解释的诸多新奇物理现象,从而催生了以强场物理和超快物理为代表的全新物理学研究领域。**激光与物质相互作用生成高次谐波是一种典型的强场非微扰物理现象。**高次谐波辐射是极佳的台面相干光源,既能用来合成阿秒脉冲,作为超快时间分辨工具,又能用来探测物质构造,作为结构诊断成像工具,因此有着十分重要的科学意义和巨大的应用价值。在本论文中,我们围绕强激光场与物质相互作用生成高次谐波这一主题进行了理论研究。

我们首先对超强超短激光脉冲技术的发展历史及其在各科技领域的应用现状做了梳理,接着以原子体系为例介绍了强激光场中的几种不同电离机制。然后,我们系统介绍了高次谐波辐射现象,包括三步模型、几种典型作用靶体系生成的高次谐波以及阿秒脉冲的合成。

接着我们介绍了高次谐波理论研究的几种常见计算模型和方法,其中,我们先详细阐述了数值求解含时薛定谔方程的方法,然后简要介绍了其它几种半经典理论方法,包括强场近似理论、Floquet 理论、含时密度泛函理论等。另外,作为对微观单原子响应计算的补充,我们也对高次谐波在介质中的宏观传播计算作了简单介绍。

最后,我们详细介绍了关于激光与物质相互作用导致高次谐波生成的几项理论研究工作,研究内容可分为三大方面:原子体系与单色激光场的作用、固体材料与单色激光场的作用以及原子体系与组合激光场的作用。

1. 原子体系与单色激光场的作用。我们以氢原子和强激光场的相互作用为例,研究了原子库仑势对高次谐波辐射的影响。我们分别关注库仑势对阈下谐波和阈上谐波的影响。在氢原子的阈下谐波辐射谱中,我们观察到了通常只在多电子体系中才会出现的法诺干涉现象,并且由法诺干涉导致的法诺共振线型明显受到库仑势的影响。另外,通过对库仑势加以一定程度的屏蔽以及调节驱动激光的椭偏率,我们发现库仑势对阈下谐波和阈上谐波的影响是不同的,从而反映出**阈下谐波和阈上谐波有着不同的内在生成机制。**

2. 固体材料与单色激光场的作用。我们利用二维 Kronig-Penney 势场来模拟固体所具有的空间周期性结构,分别使用线偏振和圆偏振的驱动激光,研究了固体材料在近红

外激光场中电离产生的光电子动量分布谱和高次谐波辐射谱。在线偏振情形下，我们观察到了高次谐波谱截止能量的延展以及多个平台区的出现，并发现高次谐波谱截止能量和光电子能谱峰值位置具有一定的对应性。在圆偏振情形下，我们研究了高次谐波的椭偏率和螺旋方向，发现低阶谐波和高阶谐波的椭偏率有明显的不同，这体现了固体高次谐波具有带内跃迁和带间跃迁这两种不同的贡献来源。光电子动量分布谱和高次谐波辐射谱都可以在一定程度上反映出固体材料的能带结构信息。

3. 原子体系与组合激光场的作用。我们以氢原子和氦原子为例，研究了原子在多束激光组合场中生成的高次谐波，并重点关注了高次谐波的偏振性质。我们采用的驱动光均为少周期脉冲，分别对双色垂直线偏振激光、双色圆偏振激光和三束激光叠加场三种情形进行了研究。我们发现，在少周期组合激光场作用下，原子辐射的高次谐波并不一定沿着驱动光偏振方向，而是有特定的偏振角度分布，并且偏振角度分布依赖于谐波阶次而变化。此外，调节各激光场之间的光强之比、相对相位等参数也会对谐波偏振角度分布产生明显的调制作用，反映出在组合激光场中的电子轨道控制效应。

关键词： 电离 高次谐波生成 三步模型 含时薛定谔方程 氢原子 法诺共振 光电子动量分布 少周期脉冲 偏振角度分布

Theoretical Study of High Harmonic Generation Driven by Ultrashort Laser Pulses

ABSTRACT

With the rapid development of laser sciences and technologies, the techniques to acquire ultra-intense and ultrashort laser pulses become more and more mature. When such kind of laser pulses interact with matter, many novel physical phenomena will happen. These phenomena cannot be explained by the perturbation theory, and thus motivate the establishment of new research fields, representatively, strong-field physics and ultrafast physics. High harmonic generation (HHG) from laser-matter interaction is a typical strong-field physical phenomenon and works as an excellent tabletop coherent light source. It can be used not only to synthesize attosecond pulses for ultrafast detection with unprecedented time resolution, but also to probe matter structure for diagnostic imaging with ultrahigh spatial resolution. Therefore, the research upon HHG has great scientific significances and immense application values. In this thesis, we focused on HHG from the interaction between strong laser fields and matter.

First of all, we reviewed the history of the development of ultra-intense and ultrashort laser pulse technologies and applications throughout the scientific and engineering fields. Next we took the atom as an example to introduce several mechanisms of ionization in strong laser fields. Then we systematically introduced the HHG phenomenon, including the three-step model, typical harmonic radiation from several targets, and the synthesization of attosecond pulses.

Next, we gave an overview of a few widely used calculation models and methods. We first introduced the numerical simulation of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) in detail, and then briefly set forth several other semiclassical theories, such as strong-field approximation theory, Floquet theory and time-dependent density functional theory. Also, as a supplementary to single-atom response calculation, the calculation about macroscopic propagation of high harmonics in the medium was concisely stated.

Finally, we elaborated our theoretical research works of the HHG based on the TDSE simulation, which included three topics, i.e. the interaction between the atom and a single laser field, the interaction between the solid material and a single laser field, and the interaction between

the atom and a combined laser field.

1. The interaction between the atom and a single laser field. Adopting a hydrogen atom, we studied the role of atomic Coulomb potential in high harmonic generation. We considered the impact of the Coulomb potential upon below-threshold harmonics (BTHs) and above-threshold harmonics (ATHs) separately. In the BTH spectrum of the hydrogen atom, we observed Fano interference which has only appeared in multi-electron systems. Besides, the Fano line shape is apparently affected by the Coulomb potential. Additionally, by screening the Coulomb potential and adjusting the ellipticity of the driving laser, we revealed the fact that the Coulomb potential plays different roles in the generation of the BTHs and ATHs respectively, reflecting their distinct intrinsic generation mechanisms.

2. The interaction between the solid material and a single laser field. We utilized the two-dimensional Kronig-Penney potential to simulate the spatially periodic structure of the solid. We studied the photoelectron momentum distribution and the high harmonic spectrum from the ionization of the solid irradiated by a linearly polarized and a circularly polarized near-infrared driving laser field, respectively. For the linear polarization case, we observed the extension of the cutoff energy and the multi-plateau structure in the harmonic spectrum, also we found the correspondence between the cutoff energies in the harmonic spectrum and the peaks in the photoelectron energy spectrum. For the circular polarization case, we were concerned with the ellipticities and helicities of the harmonics. It was found that the ellipticities of the low-order harmonics are obviously distinct from those of the high-order harmonics, revealing that solid harmonics stem from two different contributions, namely, intraband transitions and interband transitions. Both the photoelectron momentum distribution and the high harmonic spectrum can reflect, to some extent, the information of the energy band structure in the solid material.

3. The interaction between the atom and a combined laser field. Using a hydrogen atom and a helium atom as the example targets, we investigated the high harmonics generated by an atom interacting with a combined laser field, focusing on the polarization properties of the harmonics. The polarization directions of the high harmonics from the atom irradiated by the few-cycle combined laser field are not necessarily along the polarization directions of the driving fields, but present a certain polarization angle distribution dependent on the harmonic order. Moreover, adjusting the laser parameters such as intensity ratio and relative phase can lead to a striking modification to the polarization angle distribution, demonstrating the effect of electron trajectory control in the combined laser field.

KEY WORDS: ionization, high harmonic generation, three-step model,

TDSE, hydrogen atom, Fano resonance, photoelectron momentum distribution, few-cycle pulse, polarization angle distribution

目 录

第一章 绪论	1
1.1 引言	1
1.2 超强超短激光脉冲技术	2
1.2.1 超强超短激光脉冲技术的发展历程	2
1.2.2 超强超短激光脉冲的应用	5
1.3 强激光场中的电离机制	6
1.3.1 多光子电离	7
1.3.2 阈上电离	8
1.3.3 隧穿电离	10
1.3.4 越垒电离	13
1.3.5 高阶阈上电离与高次谐波	13
1.4 强激光场中的高次谐波生成	14
1.4.1 高次谐波的发现	15
1.4.2 高次谐波产生的理论模型	16
1.5 不同作用靶体系中高次谐波生成的研究	23
1.5.1 原子体系高次谐波	24
1.5.2 分子体系高次谐波	28
1.5.3 固体材料高次谐波	31
1.6 高次谐波与阿秒科学	32
1.6.1 高次谐波的相干性	32
1.6.2 高次谐波合成阿秒脉冲	33
1.6.3 阿秒科学	35
1.7 论文各章节内容概要	39
第二章 激光与物质相互作用研究中的基本理论方法	41
2.1 理论方法概述	41
2.2 数值求解含时薛定谔方程	42
2.2.1 薛定谔方程概述	42
2.2.2 Crank-Nicholson 方法	47

2.2.3	劈裂算符方法	51
2.2.4	初态波函数的计算方法	52
2.2.5	边界的处理	55
2.2.6	库仑势的选取	56
2.2.7	高次谐波辐射谱的计算	58
2.3	强场近似理论	59
2.3.1	强场近似理论基本框架	59
2.3.2	强场近似理论计算高次谐波	62
2.4	Floquet 理论	63
2.5	含时密度泛函理论	65
2.6	宏观传播效应	66
2.6.1	激光与高次谐波的宏观传播	66
2.6.2	宏观传播的理论计算模型	68
2.6.3	宏观传播的物理效应	72
第三章	原子库仑势在阈下和阈上谐波生成中的作用	75
3.1	引言	75
3.2	数值模型	77
3.3	高次谐波中的法诺共振以及库仑屏蔽势的影响	78
3.3.1	瞬态吸收谱与法诺共振	78
3.3.2	高次谐波中的法诺共振	80
3.3.3	屏蔽库仑势对高次谐波的影响	85
3.4	本章小结	89
第四章	固体在任意偏振激光场中的电离和高次谐波	91
4.1	引言	91
4.2	数值模型	93
4.3	不同偏振状态驱动激光作用下的光电子动量分布和高次谐波	96
4.3.1	光电子动量分布	96
4.3.2	线偏振激光场作用下的高次谐波	100
4.3.3	圆偏振激光场作用下的谐波椭圆偏率和螺旋方向	103
4.4	本章小结	106

第五章 原子在少周期组合激光场中生成的高次谐波	107
5.1 引言	107
5.2 数值方法	109
5.3 原子在组合激光场作用下生成高次谐波的偏振性质	110
5.3.1 氢原子在双色垂直线偏振激光场中的高次谐波辐射	110
5.3.2 氢原子在双色圆偏振激光场中的高次谐波辐射	113
5.3.3 氦原子在三束线偏振激光场中的高次谐波辐射	114
5.4 本章小结	118
第六章 总结和展望	121
6.1 总结	121
6.2 展望	122
附录 A 主要程序源代码	125
参考文献	137
攻读学位期间发表的学术论文	173

第一章 绪论

1.1 引言

自从人类文明诞生以来，人们对大自然的探索就从未停止脚步。随着科学技术的进步发展，人们对世界的认知越来越广泛，也越来越深入。大到宇宙天体，小到微观粒子，无论是浩瀚无垠的天体外部空间，还是精细无比的粒子内部结构，都成为人们探索研究的对象。

自从 J. J. Thomson 在 1897 年发现电子之后，人们对微观世界物质的认知达到了新的高度。分子原子等微观粒子的运动时间尺度极短，如图1-1所示，原子在分子层面的运动时间为皮秒 (picosecond, $1 \text{ ps}=10^{-12} \text{ s}$) 量级，而电子在原子分子内的运动时间是飞秒 (femtosecond, $1 \text{ fs}=10^{-15} \text{ s}$) 乃至阿秒 (attosecond, $1 \text{ as}=10^{-18} \text{ s}$) 量级。正因为微观粒子的运动时间如此之短，所以人们在过去的很长时间里对它们的认知和研究还只能局限于整体的静态或准静态过程，而无法探究其内部动力学过程。到 1960 年代激光器发明以后，随着时间分辨技术的精度提升，科学家们开始能够探测原子分子的运动，原子内部的电子运动，甚至根据研究目标人为操控电子的行为。这一切都离不开激光脉冲技术的进步，也就是激光的峰值功率和聚焦光强越来越高，脉冲宽度越来越短，并且获得超强超短脉冲的技术变得越来越成熟可靠。

超强超短激光脉冲与物质的相互作用，会出现各种各样的新奇物理现象，从而催生了全新的研究领域，最具代表性的就是**极端强场物理学和超快瞬态物理学**。

物质在强激光的辐照下，会产生非线性响应，而在不同的光场强度下，物质感应极化的非线性关系也会不同，这是其内在物理机制不同的体现。当激光强度较低时，由于其电场比原子内部的库仑电场弱，所以原子的电子波函数几乎都处于基态，仅有很小一部分处于激发态，这种非线性响应可以用传统非线性光学中的微扰论来很好地描述。然而，当激光强度达到原子内部库仑场同量级甚至更高时，电子会在极短的时间内发生电离，从原来的束缚态变为连续态，电子波包在激光场里振荡运动，而且振幅可以远远超过原子的玻尔半径，这种非线性响应就无法再用微扰论来解释，**需要用强场物理中的非微扰非线性光学来加以描述**。

原子在强激光场中的电离有着不同的物理机制，例如有多光子电离、隧穿电离、越垒电离等，而电子电离之后又可以在激光场中有各种各样不同的运动轨迹，有些电子会远离原子核，再也不返回，有些则会返回母核离子，发生再散射 (也称重散射, rescattering)，这就可能导致高次谐波产生。高次谐波是典型的强场非微扰物理现象，既可以用来合成

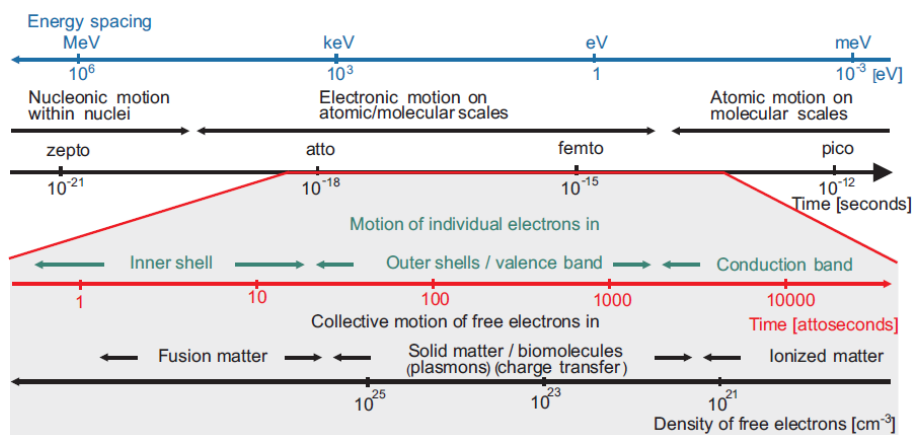


图 1-1 微观粒子运动的特征时间尺度及其对应的能量跨度。图片来自文献 [1]。

Fig 1-1 Characteristic time scales for microscopic motion and its connection with energy spacing between relevant stationary states.

阿秒脉冲，作为超快时间分辨工具，又可以用来探测物质内部构造，作为结构诊断手段，因此在超快物理领域有着重要的应用价值和研究意义。

在本章接下去的各节里，首先将会对超强超短激光脉冲技术的发展历史和现状做一个简要介绍，接着会介绍原子在强激光场中的各种电离机制，最后将较为系统地介绍高次谐波的发现、产生机制的理论模型、不同作用靶体系的高次谐波研究情况以及和高次谐波有着紧密联系的阿秒科学。

1.2 超强超短激光脉冲技术

1.2.1 超强超短激光脉冲技术的发展历程

早在 1916 年，著名物理学家 A. Einstein 就提出了光学介质在光的辐照下发生受激辐射可以导致输入光被放大的理论，这其实就是激光 (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, LASER) 的基本原理。到了 1960 年，美国科学家 T. H. Maiman 以红宝石 (Ruby) 为增益介质，制造出了世界上第一台实用激光器 [2]。从那以后，激光作为具有高度定向性、高度单色性、高度相干性的光源，强有力地推动了光与物质相互作用研究领域的发展，使得人类认识物质世界和探索自然奥秘的尺度达到了前所未有的深度和精度。

1960 年代的第一代激光器可达到的聚焦峰值功率密度还不到 10^{10} W/cm^2 ，光场对

电子运动的影响远远弱于原子核库仑电场对电子的束缚作用，因此，将激光仅仅视为微小扰动外场的微扰非线性光学理论可以很好地解释当时的诸多光学现象 [3]。在激光器问世后不久就出现的调 Q 开关技术 (Q-switching) [4] 和激光锁模技术 (Mode-Locking) [5] 使得激光的峰值功率密度提升了不少，达到了 10^{12} W/cm^2 量级。然而在此后的十几年里，激光功率就再也无法获得进一步显著提高，这主要是因为锁模技术在放大激光脉冲时伴随着无法消除的非线性效应，很容易对激光腔内的增益介质造成损伤。直到 1985 年，D. Strickland 和 G. Mourou 提出了啁啾脉冲放大 (chirped pulse amplification, CPA) 技术 [6]，才打破了这一瓶颈，使峰值功率达到了 10^{15} W/cm^2 量级以上 (CPA 技术原理如图 1-3 所示)。这项里程碑式的技术突破对于物理学的发展具有深远的意义，因为在这个光强下，激光对束缚态电子的作用力已经可以和原子库仑电场相比拟，会出现诸多真正的强场效应。随着 CPA 技术的改良和发展，激光峰值功率不断突破，如今，台面尺寸的拍瓦 (Petawatt, PW) 量级激光器已经在世界多个实验室实现 [7-9]，峰值功率密度已经可以高达 10^{22} W/cm^2 量级 [10]。

年代	1960	1970	1980	1990	2000	2010
峰值光强 (W/cm^2)	$\sim 10^{10}$ $\sim 10^{12}$	$\sim 10^{14}$ $\sim 10^{15}$	$\sim 10^{15}$ $\sim 10^{18}$	$\sim 10^{18}$ $\sim 10^{20}$	$\sim 10^{21}$ $\sim 10^{22}$	$\sim 10^{22}$
脉冲宽度	$\sim 100 \mu\text{s}$ $\sim 1 \text{ ps}$	$\sim 100 \text{ fs}$	$\sim 10 \text{ fs}$	$\sim 1 \text{ fs}$	$\sim 1 \text{ fs}$ $\sim 100 \text{ as}$	$\sim 10 \text{ as}$

图 1-2 激光脉冲的峰值功率和聚焦强度变得越来越高，脉冲宽度变得越来越短。

Fig 1-2 The peak power and focused intensity of the laser pulse keeps being raised, meanwhile the duration of the laser pulse keeps being shortened.

除了峰值光强和功率越来越高之外，激光的脉冲宽度也是越来越短。最早的激光器输出的光脉冲宽度在百微秒 (microsecond, $1 \mu\text{s}=10^{-6}\text{s}$) 量级。调 Q 开关技术 (Q-switching) 的出现使得激光的脉宽大为缩短，下降到了几十纳秒 (nanosecond, $1 \text{ ns}=10^{-9}\text{s}$) 的量级 [4]。随着激光锁模技术的发明，以及广增益染料激光介质的出现，激光脉宽得以成功地压缩到了皮秒和亚皮秒量级 [5, 11]。此后的十几年中，世界最短脉宽纪录不断被刷新。1981 年，Fork 等人在染料激光器中使用碰撞锁模技术首次获得 90 fs 的脉冲 [12]，标志着飞秒激光时代的到来。1986 年，同样使用该技术，脉宽被缩短到了 19 fs。1987 年，Fork 等人又结合光纤展宽激光光谱和光栅棱镜对组合色散补偿的技术，成功产生了脉宽仅为 6 fs 的超短脉冲 [13]。进入 90 年代后，克尔透镜锁模技术 (Kerr-lens Mode-Locking, KLM) 的出现和成熟 [14] 使得获取脉宽只有几飞秒的超短激光脉冲变得更为容易 [15]，

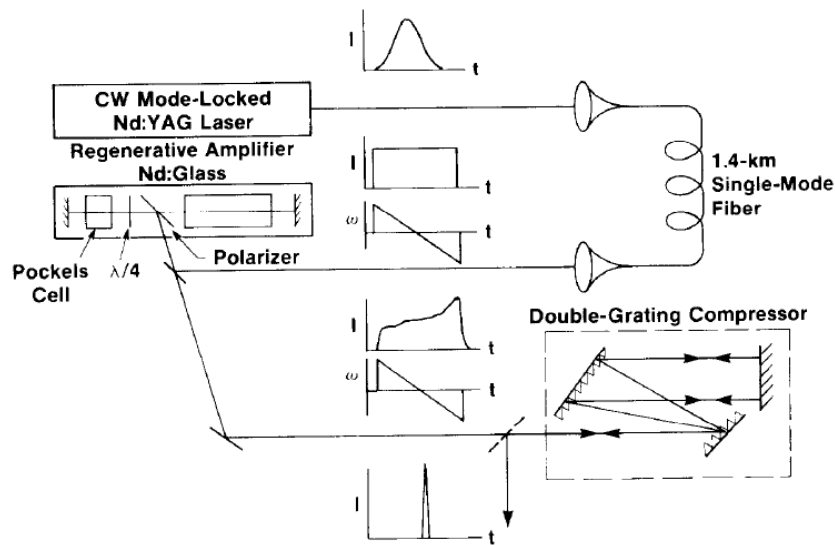


图 1-3 啁啾脉冲放大技术基本原理。图片来自文献 [6]。

Fig 1-3 Principle of chirped pulse amplification (CPA).

16]。到了 21 世纪，脉宽则进一步被压缩到 3 fs 左右，已经逼近了单个光学周期（针对钛蓝宝石激光的特征波长而言）[17, 18]。

脉宽达到几个飞秒量级之后，在多年时间里都无法再继续取得突破，这也被称为“飞秒壁垒” (femtosecond barrier)。后来，随着光学频率梳和高次谐波等领域的理论研究深入和技术发展，人们成功地合成出了脉宽达到亚飞秒量级的脉冲，也就是阿秒脉冲，从而开创了阿秒科学这一全新的领域。关于阿秒科学，我们将在 1.6 节结合高次谐波予以专门介绍。

激光的功率密度从其最初诞生到现在已经提升了十几个数量级，激光的脉宽从最初的百微秒量级一直缩短到了如今的飞秒和亚飞秒量级，一个脉冲所包含的光学周期数也从最初的成百上千个周期发展到了今天的仅有几个周期甚至单个周期 [19, 20]。对于少周期超短激光脉冲而言，脉冲的载波包络相位 (carrier envelope phase, CEP) 也可以被控制得越来越稳定 [21, 22]，脉冲之间的载波包络相移 (carrier envelope offset, CEO) 可以得到越来越精准的测量 [23]。另外，飞秒激光器的脉冲重复频率也从千赫兹 (KHz) 量级发展到了高达吉赫兹 (GHz) 量级 [24, 25]。这些技术的进步既得益于激光物理学理论的完善，同时也反过来推动了理论的发展。

如今，人们获得各种不同波段的激光脉冲都变得越来越容易，超短激光脉冲也成为越来越可靠稳定的高亮度相干光源。激光的发明对传统原子分子物理学产生了重大的影响，产生了用于分析原子分子结构的激光光谱学，激光的发明也开创了非线性光学领域，使得古老的光学理论和光学技术获得了新的发展。超短超强激光脉冲在物理学和其

他诸多科学技术领域都具有重要的应用价值，下面就将对其实用现状进行简要介绍。

1.2.2 超强超短激光脉冲的应用

飞秒激光作为一种伴随着非线性光学和激光物理学而发展起来的优质光源，是目前最为成熟而广泛应用的超强超短脉冲激光。从最早期的染料飞秒激光器，到克尔透镜锁模钛蓝宝石飞秒激光器，二极管泵浦全固态飞秒激光器，再到如今的光纤飞秒激光器，激光器的更新换代使得激光脉冲宽度越来越短，峰值功率和聚焦光强越来越高。

物理学家们利用飞秒激光超短脉宽和超强功率的特性，主要将其应用在两大研究领域，即超快瞬态现象和极端强场现象。随着激光脉冲宽度的缩短和脉冲能量的增加，这些研究得以不断深入和发展。

飞秒脉冲激光在物理学研究中的最常见应用是时间分辨超快光谱学技术。人们利用飞秒激光作为光源，推出了以泵浦-探测 (pump-probe) 为基本指导思想的多种时间分辨光谱技术，比如飞秒荧光上转换 (fluorescence upconversion) 技术、光参量荧光放大技术 (fluorescent optical parametric amplification) 技术、瞬态吸收光谱 (transient absorption spectrum) 技术 (瞬态吸收光谱的更多介绍可参见第三章)、条纹相机 (streak camera) 技术等。泵浦-探测方法的基本原理最早由 A. Töpler 于 19 世纪中叶提出 [26]，在现今的时间分辨光谱学中已经成为最主要的标准方法。它是将一束激光通过分束镜片分为两路，一路作为泵浦光，去激发物质样品发生一定的物理化学反应，而另一路作为探测光，去探测物质状态的改变，通过调节泵浦光与探测光之间的时间延迟，就能得到每个时间点的物质瞬态信息，串连起来就得到了整个过程的动态演化信息。传统的光谱学技术只能测得诸如原子能级、电子组态之类的相对稳恒的信息，但对原子振动转动、分子键断裂重组等超快反应则不足以捕捉响应。超快光谱学技术利用激光的超短脉宽，能够为探测和记录这些超快动态过程提供足够高的时间分辨能力，让我们能以更加深入和动态的眼光去认识微观物质，并为人工干预和操控微观反应过程提供了极大的可操作性。

飞秒脉冲激光在物理学中的另一个重要应用价值在于它与物质相互作用可以发生各种强场非线性物理过程，比如：可以产生等离子体 [27, 28]，可以进行电子、质子、离子等带电粒子的加速 [29–32]，可以使原子分子发生电离，分子还可能发生解离 [33–35] 并且解离过程受到激光场调控 [36–39]，可以通过电子的电离、场加速、再散射、能级跃迁等过程而产生高亮度相干辐射，辐射频率能覆盖从低频的太赫兹 (TeraHertz, THz) 一直到高频的 X 射线的各个频段，这些辐射既能被用作各种不同研究需要的相干光源，也能反映出作用靶物质自身的物理结构信息，可以用于物质的成像技术，此外，被超强激光电离出的电子可以具有很高的动能 (极短的德布罗意波长)，也能作为光源用于成像技术，并且具有超高空间分辨率，典型的如激光诱导电子衍射 (laser-induced electron

diffraction, LIED) [40, 41] 和超快电子衍射 (ultrafast electron diffraction, UED) 成像 [42, 43]。原子分子在激光场中的电离是激光与物质相互作用的最基本过程之一，这部分内容将在后续章节中予以更多详细的讨论。

另外值得一提的是，利用飞秒脉冲激光的超强功率，人们可以将其用于激光快点火、惯性约束聚变等技术，从而进一步研究核反应机制以及开发核能技术；还可以将其用于模拟天体环境 [44, 45]，产生正负电子对 [46, 47]，从而研究极端条件下的物理现象和物质特性。

除了物理学本身之外，飞秒脉冲激光在其他学科也发挥着重要的作用。在化学方面，飞秒激光技术开创了飞秒化学领域 [48]，可以用于探测记录化学键的瞬态变化过程，从而对化学反应进行量子调控。在生物学领域，飞秒激光被用来观测光合作用过程中的能量转移。在材料科学中，飞秒激光助力传统显微术，为研究材料微纳结构中的载流子超快动力学提供了可能。在信息科技方面，超短脉冲激光被用作通信光源，可用于信息的高速传输、高效处理与高密度存贮。

除了科学研究之外，在技术领域飞秒激光也有着重要的用途。在加工技术上，飞秒激光脉冲可以用于金属、半导体、高分子聚合物等各种材料的微加工，还可以用于光栅、耦合器、Fresnel 透镜等光学元件的超精细加工和集成 [49, 50]。相比于皮秒激光，飞秒激光能避免热传导所引起的材料形变，因其在热传导几乎还未进行时就已完成，从而大幅提升加工质量。在医疗技术方面，飞秒激光被用于视力矫正等高精度外科手术，可有效减少对人体组织的损伤。飞秒激光在空气中传输时可以形成光丝 (filament) [51, 52]，也具有很大应用价值：光丝具有极优的导电性能、高光强远程传输性能，可用于激光引雷、定向波导、激光推进；光丝的超连续辐射谱可用于白光激光雷达；光丝传输过程中的电离效应可诱导水汽凝结而进行人工降雨。

综上所述，超短超强激光技术不仅推动了光学乃至整个物理学领域的进步，而且还大大促进了物理、化学、生物、材料和通信等科学研究领域以及工程技术领域的交叉融合与快速发展。

1.3 强激光场中的电离机制

光的本性之一是电磁波，光场与物质相互作用的一个基本过程就是电离，即原子中的电子在外加电磁场的作用下摆脱原子核的束缚，成为自由电子。早在 1887 年，德国物理学家 H. Hertz 就发现了光电效应，而在之后的 1905 年由 A. Einstein 指出光的另一本性是光子，并由此对光电效应给出了基于光子假说的量子解释。在那个年代，由于光的强度很弱，在光和原子的相互作用过程中，一个原子只能吸收一个光子，因此 Einstein 的理论能很好地解释当时实验条件下的光电现象，他也因此在 1921 年而获得诺贝尔物

理学奖。虽然 Göppert-Mayer 在 1931 年首次预言了双光子过程的可能性 [53]，但由于当时实验室所能产生的光强不足以观察到多光子过程，因此并未引起注意。而几十年过后，随着激光器的发明和脉冲激光技术的发展，光场强度得到了巨大提升，光子数密度已经可以达到足够大，以至于一个原子能够在短时间内就吸收多个光子，由此多光子过程的理论预言得到了明确的实验验证，科学家们对电离的认识也超越了 Einstein 那个时代的理论，上升到了一个新的层次。

当超强激光和物质相互作用时，根据激光场的不同强度，原子的电离过程和机制也会相应不同。一般认为，激光光强如果低于 10^{14} W/cm^2 ，原子的主要电离机制是多光子电离 (Multi-Photon Ionization, MPI)。当激光光强增大到 10^{14} W/cm^2 至 10^{15} W/cm^2 量级时，可以使原子库仑势阱形状发生明显畸变而形成势垒。由于量子力学的隧穿效应，电子将有一定的概率穿出势垒，从而远离原子，这种电离机制就是所谓的隧穿电离 (Tunneling Ionization, TI)。多光子电离和隧穿电离是原子在强场作用下最基本的两种电离机制，其它类型的电离是在这两个概念基础上的进一步推广。

这两种电离机制在理论计算中往往可以由 Keldysh 参数来加以判别 [54]。理论物理学家 L. V. Keldysh 于 1964 年首次引入绝热参数 γ 用以区分不同激光参数条件下原子的各种电离机制，这个绝热参数又被称为 Keldysh 参数，反映的是电子从势垒隧穿电离出去所需时间 t_{TI} 与激光的光学周期 T_0 之间的相对大小，

$$\gamma = \frac{t_{TI}}{T_0} = \left(\frac{I_p}{2U_p} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (1-1)$$

其中 I_p 为原子的电离能， U_p 为有质动力能，

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega_0^2} = \frac{e^2 A_0^2}{4m}, \quad (1-2)$$

其中 e 是电子电荷量， E_0 是激光峰值场强大小， m 是电子质量， ω_0 是激光中心载波频率，和光学周期 T_0 之间存在关系 $\omega_0 = 2\pi/T_0$ ， $A_0 = E_0/\omega_0$ 为激光矢势最大值。在激光与原子分子相互作用的研究中，往往采用原子单位 (atomic units, a.u.) 制以简化表达式。在原子单位制中， $e = -1$ ， $m = \hbar = 1$ ，因此 (1-2) 式可简化为

$$U_p = \frac{E_0^2}{4\omega_0^2} = \frac{A_0^2}{4}. \quad (1-3)$$

有质动力能 U_p 是自由态电子在激光场中运动时在一个光学周期内获得的平均动能，也与束缚态电子在强激光场中会发生的能级移动有着紧密联系，具有重要的物理意义。

1.3.1 多光子电离

根据 Keldysh 理论，当 $\gamma \gg 1$ 时，原子电离过程中占主导地位的机制是多光子电离。多光子电离是指原子中的电子通过吸收 N 个光子而从束缚态跃迁到连续态的过程， N

是电离过程中吸收的光子数目，一般 $N > 2$ ，MPI 过程的示意可见图1-4(a) 以及1-6(a)。1965 年，Voronov 和 Delone 最早在氙原子和红宝石激光相互作用的实验中观测到了多光子电离现象 [55]。这一非线性过程可以用最低阶微扰理论 (Lowest-Order Perturbation Theory, LOPT) 来描述。根据 LOPT 理论，多光子电离的电离率 R_{MPI} 为

$$R_{MPI} = \alpha_{(N)} I^N \quad (1-4)$$

式中 N 表示原子电离过程中至少需要吸收的光子数目，比例系数 $\alpha_{(N)}$ 表征电离跃迁几率，不仅和 N 有关，还依赖于原子结构和激光参数， I 是入射激光强度。Lompré 等人在氙原子的电离实验中观察到了 N 高达 22 的多光子电离过程，而且实验结果较好地验证了以上的 MPI 电离率公式 [56]。

值得注意的是，在激光强度相对较低时，LOPT 理论可以精确描述多光子电离，然而当激光强度增加到某个阈值时，原子中所有的电子将全部被电离，即使光强继续增大，也不会有电离事件发生，这个强度被称为饱和光强 I_{sat} 。当 $I > I_{sat}$ 时，基于 LOPT 理论的电离率公式 (1-4) 将失效。另外，公式 (1-4) 仅适用于非共振电离的情况，无法准确描述涉及到共振多光子电离 (Resonant MPI) 的过程。

1.3.2 阈上电离

阈上电离的概念是建立在多光子电离的基础上的。多光子电离的研究成果引起了科学家们的广泛兴趣，但随着激光所能达到的光强变大，多光子电离行为出现了一些无法用微扰论解释的特征，阈上电离现象就是其非微扰特征的一种典型体现。值得一提的是，1976 年 Coleman 等人推出了具有较高精度的带电粒子飞行时间 (Time of Flight, TOF) 谱仪 [57]，使得科学家们可以记录原子电离后出射的光电子动能谱。和其他强场物理研究一样，阈上电离的研究发展同样也得益于光电子能谱的测量技术的不断进步。

1979 年，Agostini 小组用倍频后的 Nd:YAG 激光和氙气进行作用 [58]，他们分析光电子能谱发现，氙原子在吸收了 6 个光子 (单光子能量 2.34 eV) 而达到电离阈值 (12.27 eV) 以上之后，并没有完全停止吸收，而是仍然以一定概率继续吸收更多光子，从而光电子获得更大的出射动能。这种电子从光场中吸收比电离实际需要量更多的光子的现象被称为阈上电离 (Above Threshold Ionization, ATI) [59, 60]，ATI 过程的示意可见图1-4(b)。Agostini 小组的这项工作被认为是最早观测到 ATI 过程的实验成果，他们测得的光电子能谱可见图1-5(a)。在一个典型的 ATI 光电子能谱中，相邻的峰之间对应的能量间隔都相等，并且正好等于一个激光光子的能量 $\hbar\omega_0$ ，这一系列峰被称为“ATI 峰”。

这一新的电离现象被发现后的伊始，人们仍用微扰论来加以描述和分析。1980 年，Gontier 和 Trahin 将 LOPT 理论应用于描述阈上电离过程 [61]。原子中的电子吸收 $N + S$

个光子发生阈上电离的电离率 R_{ATI} 可以表示为:

$$R_{ATI} = \sum_{S=0}^{\infty} \alpha_{(N,S)} I^{N+S} \quad (1-5)$$

其中, N 仍表示电离所需要吸收的最少光子数目, 而 S 则表示阈上电离相对于多光子电离又额外吸收的光子个数, 比例系数 $\alpha_{(N,S)}$ 和 $\alpha_{(N)}$ 类似, 不同的是还依赖于 S 的大小。1982 年, Fabre 和 Petite 等人以氙气为作用靶的阈上电离实验 [62] 很好地验证了这个基于微扰论的阈上电离电离速率的公式。出射的光电子动能 E_k 可以由下式来描述:

$$E_k = (N + S)\hbar\omega_0 - I_p \quad (1-6)$$

其中 I_p 是电离能。

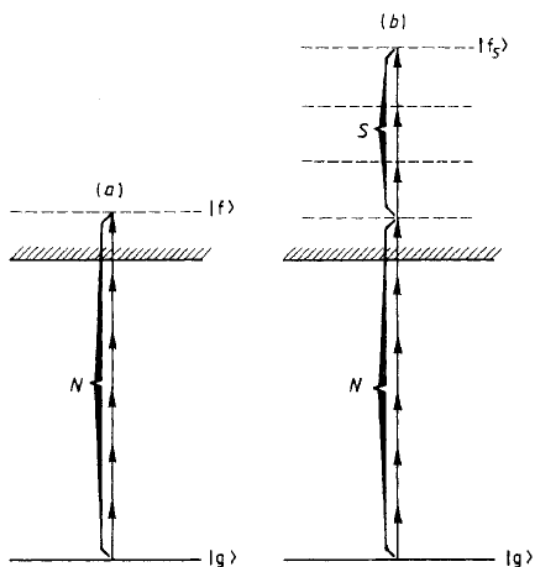


图 1-4 (a) 多光子电离示意图, 其中 $|g\rangle$ 表示基态, $|f\rangle$ 表示自由态。(b) 阈上电离示意图, 其中 $|f_s\rangle$ 表示电子吸收额外的 S 个光子达到的自由态。图片来自文献 [62]。

Fig 1-4 (a) Scheme of MPI, with $|g\rangle$ being the ground state and $|f\rangle$ the free state. (b) Scheme of ATI, with $|f_s\rangle$ being the free state after S additional photons are absorbed.

在激光场强并不太强的情况下, 光电子能谱中的峰的高度随着能量的增大而单调递减, 这符合微扰论的预期。然而, 在世界各地多个研究组的实验中, 人们都发现了一个奇特的现象: 随着激光强度的增加, ATI 能谱中的第一个峰和前几个低阶峰却会逐渐变小甚至消失。这种现象在 1983 年由 Kruit 和 Read 首次进行了系统化的调研 [63]。1985

年, Lompré 等人发现, 当激光强度达到 10^{15} W/cm^2 时, 氦原子的 ATI 能谱中前二十多个峰都消失了 [64]。这种低能峰的抑制现象预示着阈上电离中的高阶过程和低阶过程的作用不相上下, 甚至高阶过程更占主导地位, 这显然是原先的微扰论无法解释的。1986 年, Yergeau 等人用不同光强的 1064 nm (nanometer, $1 \text{ nm}=10^{-9} \text{ m}$) 波长激光和氙气进行作用, 并利用空间电荷效应消除技术和高分辨率 (35 meV) 的时间飞行谱仪得到了高精度 ATI 能谱, 如图 1-5(b) 所示 [65]。通过对比不同激光场强下的阈上电离光电子能谱, 我们可以发现, 随着驱动激光脉冲能量的提升, 低能峰强度明显被抑制而高能峰逐渐显著, 这清晰地体现了非微扰效应的增强。这个实验标志着人们对阈上电离的研究从微扰论区域转变到了非微扰论区域。

针对这一现象, 人们提出了多种理论来解释其物理机制, 目前较为公认的一种机制是动态斯塔克效应 (AC-Stark effect)。自由电子在激光场的作用下会获得有质动力能, 而当入射激光很强时, 处于束缚态的电子也会获得一定的有质动力能。原子的高里德堡态 (Rydberg state) 能级受核的束缚较弱, 接近于自由态, 它们在激光场的作用下产生的能级上移接近于有质动力能 U_p , 而基态和低束缚态能级, 则由于受核的吸引很强, 产生的能级移动几乎可以忽略。因此在强激光场的作用下, 基态电子的电离能也相当于增加了 U_p , 这意味着基态电子必须额外吸收总能量接近 U_p 的若干光子后才能电离。

对于发生 AC-Stark 移动的阈上电离, 出射的光电子动能 $E_{k-Stark}$ 为:

$$E_{k-Stark} = E_k - U_p = (N + S)\hbar\omega_0 - I_p - U_p. \quad (1-7)$$

随着激光强度的增加, 电离能的增量也变大, 这时原来的低阶电离通道就会被阻闭, 因此低阶 ATI 峰信号会被抑制。同时, 电子需要吸收更多的光子能量才能够电离, 于是光电子所能获取的动能变小了, 因此 ATI 峰会整体向低能方向有一个偏移。

当激光强度进一步增大时, 将出现高阶阈上电离 (high-order ATI), 其光电子能谱又将呈现出新的有趣结构, 关于高阶阈上电离的内容, 将在 1.3.5 小节进行介绍。

1.3.3 隧穿电离

Keldysh 创造性地将静电场的隧穿电离物理图象应用于原子在强激光场中的电离。根据 Keldysh 理论, 当 $\gamma \leq 1$ 时, 原子的电离机制将从多光子电离向隧穿电离转变, 当 $\gamma \ll 1$ 时, 隧穿电离将成为最主要的电离机制, TI 过程的示意可见图 1-6(b)。由 γ 的定义易知, $\gamma \ll 1$ 对应的激光条件是激光的强度很高并且激光频率很低, 此时激光电场相对于电子运动频率而言可以近似认为是静电场。在这种准静态近似下, 原子的势场在激光电场的调制下发生严重的畸变, 即原子核库仑势场会和激光电场在其偏振方向上叠加而合成一个势垒, 激光强度越强, 势垒的一侧就被压得越低, 形成的势垒就越窄。

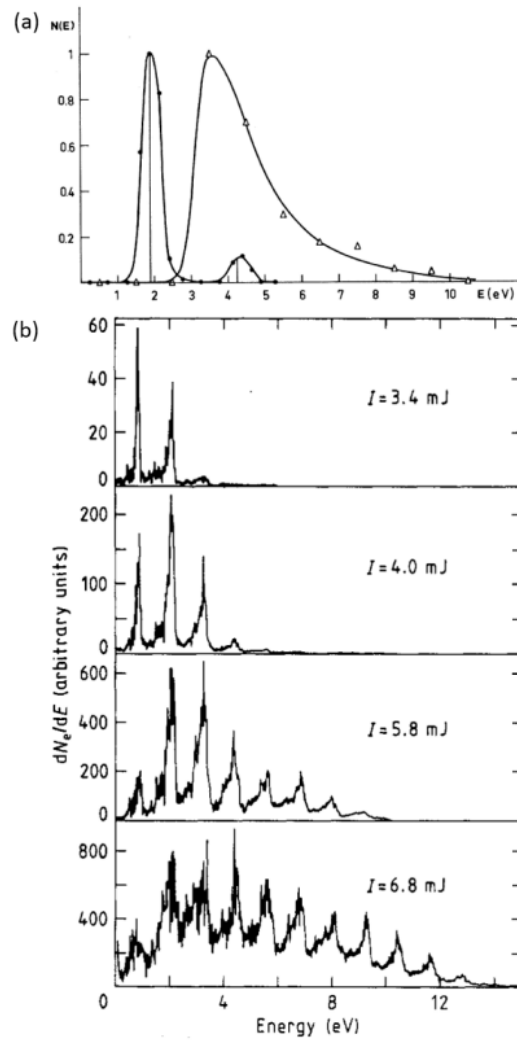


图 1-5 (a) 最早的阈上电离实验光电子能谱，图片来自文献 [58]。(b) 不同激光场强下的阈上电离光电子能谱对比，图片来自文献 [65]。

Fig 1-5 (a) The earliest ATI photoelectron energy spectra. (b) Comparison of ATI photoelectron energy spectra under different laser intensities.

根据量子力学规律易知，势垒越窄，电子发生量子隧穿而被电离的概率就越大。隧穿电离的电离速率计算是开展强场电离理论研究的核心之一。1986年，Ammosov, Delone 和 Krainov 在 Keldysh 的工作基础上又拓展了隧穿电离的理论模型，被称为 ADK 理论 [66]。根据 ADK 理论，原子在强激光场中隧穿电离率 $R_{TI}(t)$ 满足下式：

$$R_{TI}(t) = \frac{\alpha_{TI}}{|\mathbf{E}(t)|} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}|\mathbf{E}(t)|}\right), \quad (1-8)$$

其中， $\mathbf{E}(t)$ 是激光电场的瞬时场强， Z 是原子核电荷数， $n^* \equiv Z/\sqrt{2I_p}$ 为有效主量子数。从上式可以看出，电离率和具体原子固有参数有关，但最主要取决于激光瞬时场强，并且随时间的变化关系也是高度非线性的，式中的比例系数 α_{TI} 和激光场椭偏率有关，在此不做更多展开。

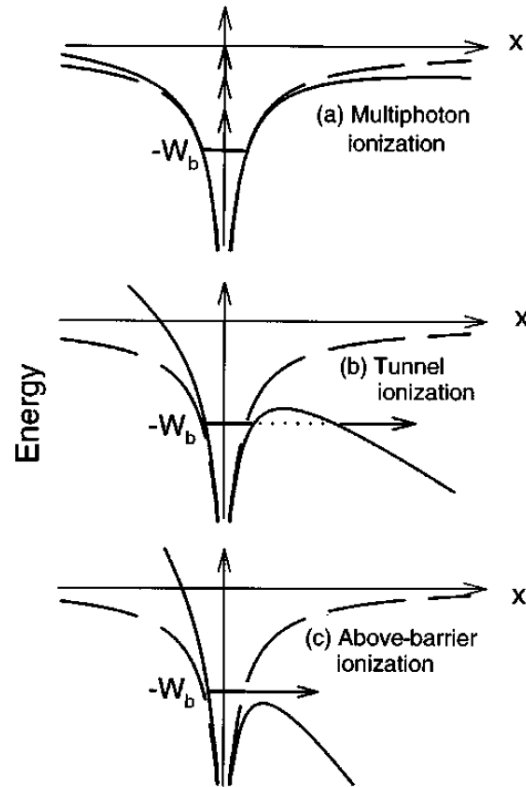


图 1-6 原子在强激光场中的三种电离机制，其中 $-W_b$ 表示基态能量。(a) 多光子电离。(b) 隧穿电离。(c) 越垒电离。图片来自文献 [19]。

Fig 1-6 Three ionization mechanisms for an atom in strong laser fields, where $-W_b$ stands for the energy of the ground state. (a) MPI. (b) TI. (c) OTBI.

1.3.4 越垒电离

越垒电离的概念是建立在隧穿电离的基础上的。如果激光强度在达到隧穿区后再进一步提升,那么原子的库仑势场可能被压制得很低,以至于激光场和库仑势场叠加形成的势垒的最高顶点已经下降到比原子的基态电子能量 $-I_p$ 还要低,这种情况下,即使是处于基态的电子也可以直接越过这个势垒而达到自由态,这就是所谓的越垒电离(Over-the-Barrier Ionization, OTBI), OTBI 过程的示意可见图1-6(c)。从隧穿电离转变为越垒电离的临界条件就是合成势垒的最高顶点恰好等于原子的基态电子能量。

以一维情况为例,原子库仑势 $V(x) = -\frac{Z}{|x|}$, 其中 Z 为原子核电荷数;激光场势能 $V_{laser} = -E_0 \cdot x$, 其中 E_0 为激光电场峰值场强。由此易知,两者合成的势垒的最高顶点势能为

$$V_{tot}(x) = -\frac{Z}{x} - E \cdot x \leq -2\sqrt{ZE_0}. \quad (1-9)$$

令 $-I_p = -2\sqrt{ZE_0}$, 易知相应的临界激光光强 I_{th} 可以由下面的公式来估算:

$$I_{th} = 3.51 \times 10^{16} \times E_0^2 = \frac{3.51 \times 10^{16} \times I_p^4}{16Z^2}, \quad (1-10)$$

其中 I_p 使用的是原子单位 (a.u.), 计算得到的 I_{th} 的单位为 W/cm^2 。

如上一小节所述,隧穿电离的电离速率和激光电场的瞬时场强有关,可以由 ADK 理论来解析表达,但是目前的强场电离研究领域内,还没有一个简单明确的解析模型能很好地描述越垒电离机制的电离速率,总的电离概率随时间的变化关系也是高度非线性的。虽然没有解析表达式,但人们可以通过数值求解含时薛定谔方程 (Time-Dependent Schrödinger Equation, TDSE) 来得到电离率变化情况的具体数值结果,关于 TDSE 的具体求解方法,我们将在第二章里给出更多详细的介绍。

1.3.5 高阶阈上电离与高次谐波

在早期的阈上电离研究中,阈上电离能谱除了随着入射光强度的增大低阶的光电子峰被抑制而高阶峰逐渐显现之外,还有一个明显特征就是无论光强具体大小,能谱的截止位置总是大约在 $2U_p$ 处。这个现象可以在经典力学框架下进行描述。首先电子在强场中电离,然后电离的电子在激光场里运动的过程中吸收能量,这部分能量会在各个能量态重新分布。1989年, P. B. Corkum 等人通过经典运动模型计算,预言了 ATI 能谱的截止位置在 $2U_p$ 的概率是最大的,并与很多实验结果都相符 [67]。

后来随着实验测量精度的提高,特别是高重复率飞秒激光器的发展和成熟,为有效探测高能电子提供了必备技术条件,使得光电子能谱的测量技术得到了进一步改善,又有一些新的现象被观察到了。1994年, Paulus 等人利用高重复率飞秒激光器测量了一系

列惰性气体原子的 ATI 能谱 [68], 发现得到的 ATI 能谱在低能区的前几个峰呈下降趋势, 接着就出现了一个平台结构 (plateau), 在平台区域的电子分布强度随着能量的变化非常缓慢, 而在达到某一能量值后, 强度又开始随着能量的增大迅速衰减。在他们的实验中, 所有种类的惰性气体原子得到的 ATI 能谱都出现了这种平台结构, 这一现象引起了广泛关注。1996 年, Walker 等人选择氦原子针对这一现象开展了进一步研究 [69], 并系统阐述了低能区的截止能量为 $2U_p$ 的分布来自直接电离电子 (directly ionized electron) 的贡献, 而平台区的截止能量为 $10U_p$ 的分布来自再散射电子 (rescattering electron) 的贡献。

这种在高能区具有平台结构的光电子能谱就是高阶阈上电离谱。在高阶阈上电离谱中, 能量 $0 \sim 2U_p$ 之间的分布强度随着能量增大快速下落, 这部分的贡献来自于直接电离电子, 也就是被激光场加速而并未与母核再度发生散射的电子, 对于这部分电子来说, 在电场峰值处的电离概率最大, 但动能最小 (趋于 0), 而在电场趋于 0 处的电离概率最小, 但动能最大 ($2U_p$), 因此整体分布是呈现出迅速降低趋势。而如果电子在激光场驱动下又回到母核位置并与之发生再散射, 那么这个电子经过激光场再次加速后可以获得更多的动能。如果电子与母核之间是背向散射 (散射角为 180°), 那么它在激光再次加速后所能获得的最大动能可以高达 $10U_p$; 如果电子被母核散射到其他角度, 则最大动能会小于 $10U_p$ 。

事实上, 高阶阈上电离谱中的平台结构正是高次谐波谱的典型特征。与阈上电离一样, 高次谐波辐射也是一种典型的强场非微扰现象, 于 1987 年首次被实验观测到。高次谐波谱的最大结构特征也是包含一个平台区, 这一现象可以用半经典再散射模型很好地解释, 而半经典再散射模型同样也能很好地解释高阶阈上电离谱中的平台结构。在本章的后续小节中, 将对高次谐波进行详细的介绍。而关于阈上电离和高次谐波之间的联系, 在第四章中还将进行更多的讨论。

1.4 强激光场中的高次谐波生成

当激光场强到可以和原子核库仑电场相比拟甚至超过库仑电场时, 强场非微扰效应就会出现, 原子分子中的电子动力学过程将会和弱场情况下大为不同。上一节所阐述的阈上电离和隧穿电离等都是典型的强场非微扰效应, 除此之外, 还有一些强场效应是基于发生电离的电子在激光场中获取一定动能后又返回母核这一过程的。例如, 电子返回母核后可能将动能传递给另一个电子, 导致其电离, 形成所谓的非时序双电离 (non-sequential double ionization, NSDI) [70–76]; 另外, 电子也可能在撞到母核后又被散射出去, 成为具有较大动能的光电子, 发生高阶阈上电离 [77–82]; 当然, 电子撞到母核后还有一种可能是又回到基态并辐射出一个高能光子, 辐射光子能量是入射激光光

子能量的整数倍，并且可以高达入射光子能量的几十甚至几百倍，这种辐射就是高次谐波，这个过程被称为高次谐波的生成 (High-order Harmonic Generation, HHG)。本节将会详细介绍高次谐波研究的情况。

1.4.1 高次谐波的发现

早在 1961 年，也就是第一台红宝石激光器问世后不久，密西根大学的 Franken 和 Hill 等人就在实验中产生了光学二倍频谐波 (Second-harmonic generation, SHG) [83]。他们通过将中心波长为 6943 \AA (\AA Angstrom, $1 \text{ \AA}=10^{-10} \text{ m}$) 的激光射入石英晶体，成功输出了频率为入射光频率两倍的谐波 (中心波长为 3472 \AA)，实验结果见图1-7。



图 1-7 最早的光学二倍频谐波实验结果。图片来自文献 [83]。

Fig 1-7 The earliest experimental result of optical second-harmonic generation.

随后在 1965 年，P. Maker 等人就在石英晶体和玻璃等介质中产生了光学三倍频谐波 (Third-harmonic generation, THG) [84]。不久后的 1967 年，G. H. C. New 等人又在激光与氦、氖、氩等惰性气体相互作用的实验里首次从气相介质中生成了三倍频谐波 [85]。

在最初阶段，人们只能在实验中得到阶次很低的谐波。这种现象可以用微扰理论得到很好的解释。1973 年，S. Harris 根据理论计算，预言在低密度原子气体的多光子电离过程中，高阶极化过程可能比低阶极化过程更为显著，从而产生可观的入射激光的 N 倍频辐射，频率可以高达真空极紫外 (vacuum ultraviolet, VUV) 和软 X 射线 (soft X-ray) 波段 [86]。虽然当时还没有高次谐波这一说法，但可见其概念雏形已经形成。

到了 1987 年，B. Shore 和 P. Knight 通过对阈上电离的研究提出理论预测，电离出去的电子在振荡激光电场的驱动下可能重新返回母核并被母核俘获，从而辐射出高次谐波 [87]。就在当年，伊利诺伊大学芝加哥分校的 A. McPherson 等人就报道了首次成功产生高次谐波的实验 (实验装置示意图见图1-8) [88]，他们用中心波长为 248 nm (nanometer, $1 \text{ nm}=10^{-9} \text{ m}$)、脉宽约为 1 ps 的 KrF 激光和氦 (He)、氖 (Ne)、氩 (Ar)、氪 (Kr)、氙 (Xe) 等各种惰性气体介质相互作用，成功地在这类气体介质中观测到了高次谐波，并在氖气中观测到了高达 17 阶的谐波 (14.6 nm)，从而验证了 Shore 和 Knight 的理论预言。

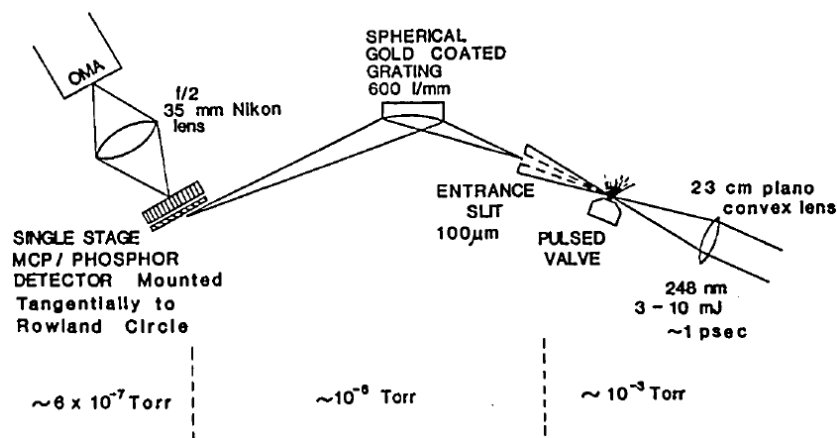


图 1-8 McPherson 小组的高次谐波生成实验装置。图片来自文献 [88]。

Fig 1-8 The setup of HHG experiment by McPherson's group.

此后不久，关于实验产生高次谐波的报道就开始大量地出现 [89–92]，而无论作用靶介质是何种原子，几乎所有实验得到的高次谐波辐射谱都具有一个高度相似的结构特征：最开始几个低阶谐波的强度随着阶次的增加急速下降，随后则出现一个谐波平台，在平台区所有谐波的强度都相近，几乎不随着谐波阶次而变化，最后在平台区末端的某一阶次谐波附近，谐波强度又急速下降好几个数量级。这种急速下降—缓变平台—急速下降的结构是高次谐波谱的最大典型特征，如图1-9所示，在平台区末端，强度开始快速下降的谐波频率称为截止频率 ω_{cutoff} (cutoff frequency)，该谐波对应的阶次称为截止阶次。

在高次谐波谱中，谐波光子能量小于电离阈值 I_p 的低频谐波称为阈下谐波 (below-threshold harmonic, BTH)，一般情况下，阈下谐波的强度随着随着谐波阶次的增大而快速减弱。关于阈下谐波的内容，将会在第三章中给出更多介绍。除了特别指出的以外，通常所说的高次谐波，一般都是指处于平台区的谐波或更高能量区域的谐波，由于谐波光子能量大于电离阈值 I_p ，所以这些高频谐波相应地被称为阈上谐波 (above-threshold harmonic, ATH)。

高次谐波的大量实验推动了相关理论研究的发展，人们提出了各种关于高次谐波产生机制的猜测，并形成了多种理论模型，下一节将对几种主要模型进行介绍。

1.4.2 高次谐波产生的理论模型

高次谐波产生机制的主要理论模型包括三步模型、Lewenstein 模型和干涉模型。需要指出的是，这三种模型虽然使用的图象和理解的角度有所不同，但其物理本质是一致的。下面就对这三种模型分别予以介绍。

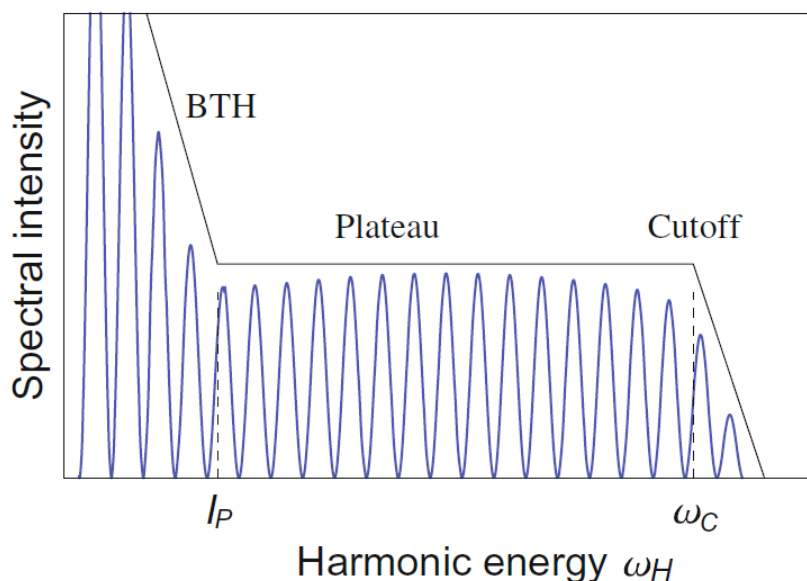


图 1-9 典型的高次谐波辐射谱。图片来自文献 [93]。

Fig 1-9 A typical high harmonic emission spectrum.

首先来介绍三步模型。

由 P. B. Corkum 提出的三步模型 [94] 属于半经典理论体系，是最著名的高次谐波理论模型，并且得到了研究者的普遍接受。半经典三步模型将激光与原子相互作用生成高次谐波的过程分为以下三步：第一，电子在激光电场中发生隧穿电离，成为自由电子，且初始速度和初始位移均为 0；第二，在振荡的激光电场驱动下，电子做加速运动并获得一定动能；第三，在激光电场的作用下，电子有一定的概率会返回到原子核的附近，与原子核发生复合而重新回到基态，返回电子携带的动能 E_k 与原子的电离能 I_p 合在一起，转化为一个高次谐波光子辐射出来，这个过程简单原理示意如图 1-10 所示。根据三步模型，辐射高次谐波光子的能量为 $\hbar\omega_{har} = E_k + I_p$ ，并且为驱动激光频率 ω_L 的整数倍 $\omega_{har} = N\omega_L$ 。对于单原子体系而言，如果激光电场的形式是对称的，那么 N 只能取奇数，关于这一点，将在后文予以解释。

电子回到母核处时所携带的动能和电子在激光场中的运动轨迹有关，而电子的轨迹则取决于电子发生隧穿电离时刻的激光电场相位。1992 年，Krause 等人 [95] 从他们的数值计算中得到，返回电子携带的最大动能约为激光场有质动力能的 3 倍 $E_{kmax} \approx 3U_p$ ，而这个能量与电离能 I_p 之和就对应于高次谐波谱中的截止能量 E_{cutoff} 。三步模型可以给出更为精确的计算结果，电子返回携带的最大动能为 $E_{kmax} = 3.17U_p$ ，并且指出了携带最大返回动能的电子发生电离的时刻 t_i 所对应的激光场相位应该是 $\phi_L = \omega_L t_i = 17^\circ \pm k \cdot 180^\circ$ ，其中 k 是一个整数。

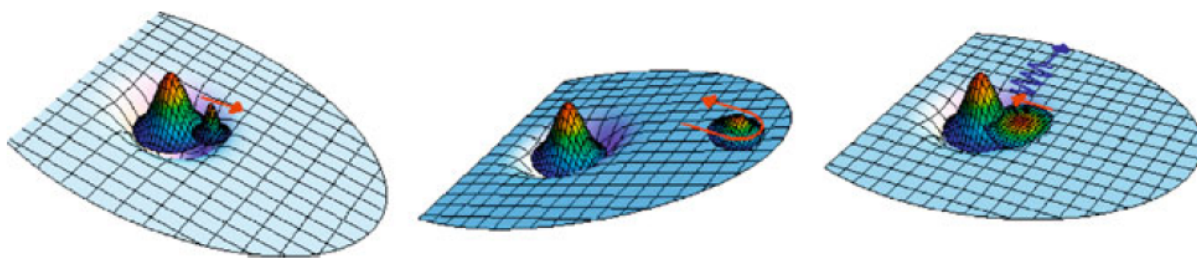


图 1-10 高次谐波产生的三步模型。图片来自文献 [93]。

Fig 1-10 Three-step model for HHG.

下面以一维情况为例，给出三步模型的数学描述（使用原子单位制）。

假设入射激光为线偏振单色场，电场形式为

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t), \quad (1-11)$$

其中 E_0 和 ω_0 为激光的电场振幅和中心频率。电子被电离后，认为不再受库仑势影响，在激光场中的运动可以由经典牛顿方程来描述：

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = E_0 \cos(\omega_0 t), \quad (1-12)$$

这里 x 代表电子位移，即与母核的距离（母核的位置为 $x = 0$ ）。

$$v(t) = \frac{dx}{dt} = \frac{E_0}{\omega_0} [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)] + v(t_0), \quad (1-13)$$

其中 $v(t_0)$ 表示电子的初始速度。电子的位移 $x(t)$ 为

$$x(t) = -\frac{E_0}{\omega_0^2} [\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) + \omega_0(t - t_0) \sin(\omega_0 t_0)] + v(t_0)(t - t_0) + x(t_0), \quad (1-14)$$

其中 $x(t_0)$ 表示电子的初始位移。根据三步模型的基本假设， $v(t_0) = 0$ ， $x(t_0) = 0$ ，因此以上两式可简化为：

$$v(t) = \frac{dx}{dt} = \frac{E_0}{\omega_0} [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)], \quad (1-15)$$

$$x(t) = -\frac{E_0}{\omega_0^2} [\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) + \omega_0(t - t_0) \sin(\omega_0 t_0)]. \quad (1-16)$$

假设电子在 t_{re} 时刻回到母核位置发生复合, 则有 $x(t_{re}) = 0$, 由此可以对每一个特定的 t_0 通过 (1-16) 式求出 t_{re} , 再通过 (1-15) 式求出电子在复合时刻的动能 E_{Return}

$$E_{Return} = \frac{1}{2}v^2(t_{re}) = \frac{E_0^2}{2\omega_0^2}[\sin(\omega_0 t_{re}) - \sin(\omega_0 t_0)]^2. \quad (1-17)$$

可以注意到, 上式中的系数 $E_0^2/2\omega_0^2$ 是 $2U_p$, 在理论计算中, 也往往以 U_p 为单位来表示电子返回母核发生复合时的动能。

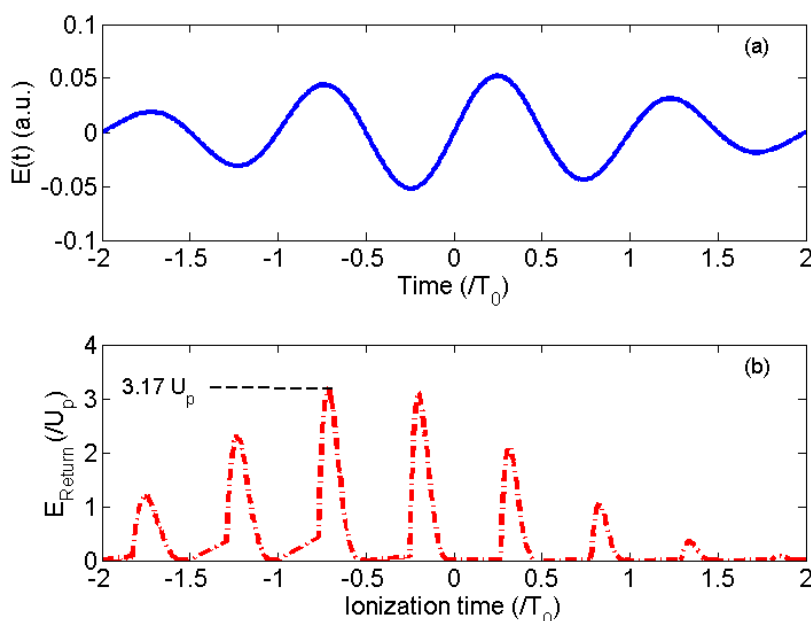


图 1-11 根据三步模型计算的不同时刻电离的电子所携带的返回动能。

Fig 1-11 The calculated kinetic energy of the returning electron ionized at different instants according to the three-step model.

图1-11展示了根据三步模型得到的计算结果, 其中图1-11(a)为激光电场, 图1-11(b)显示了不同时刻电离出去的电子在返回母核时携带的动能, 可以看到, 电子所可能携带的最大动能是 $3.17U_p$ 。

由三步模型可以得到如今普遍公认的原子高次谐波截止能量计算公式

$$E_{cutoff} = \hbar\omega_{cutoff} = 3.17U_p + I_p. \quad (1-18)$$

三步模型给出了清晰的物理图像, 并表明返回母核的电子最终回到基态是高次谐波产生最主要的贡献。对于单原子体系, 假设其基态波函数和库仑势函数都是对称的, 并

且激光场也是对称的，那么高次谐波辐射谱中只会出现奇数倍激光频率的谐波峰。原因如下：电子经过电离—加速—复合而辐射出频率为 ω 的高次谐波，我们将这个过程称为一次辐射事件，假设某一次事件的辐射为 $\tilde{E}(\omega)e^{i\frac{\omega}{\omega_L}\pi}$ ，那么在周期性激光场中，这种事件每隔半个激光周期就发生一次，并且相邻的两次事件的辐射除了符号相反和有相移 π 之外其它都是全同的。最后，光谱仪测量到的高次谐波谱中，频率为 ω 的成分是所有这些辐射事件的叠加

$$\tilde{E}(\omega)_{tot} = \tilde{E}(\omega)e^{i\frac{\omega}{\omega_L}\pi} - \tilde{E}(\omega)e^{i\frac{\omega}{\omega_L}2\pi} + \tilde{E}(\omega)e^{i\frac{\omega}{\omega_L}3\pi} - \dots \quad (1-19)$$

从 (1-19) 式不难看出，若 ω/ω_L 为偶数，则求和项正负相消，最后的 $\tilde{E}(\omega)_{tot}$ 为 0，若 ω/ω_L 为奇数，则求和项均为同号，最后的 $\tilde{E}(\omega)_{tot}$ 是有效的相干叠加，因此高次谐波辐射谱中仅包含奇数倍激光频率的谐波峰。

最后，值得一提的是，公式 (1-18) 仅适用于单原子体系，对于分子或者更为复杂的固体结构，库仑势场的形式不再像原子情形那么简单，电子行为更加复杂，运动轨迹的可能性也更为多样化，因此这个公式就不再普遍成立了。

接下来介绍 Lewenstein 模型。

虽然半经典三步模型直观地给出了高次谐波产生原理的物理图像，并成功解释了高次谐波谱的部分特征，但对微观过程的准确描述需要更为量子化的理论。第一个利用量子力学概念对高次谐波的理论描述是由 Lewenstein 等人在 1994 年完成的 [96]，这个理论模型被称为 Lewenstein 模型。这个模型的基础是强场近似理论 (strong-field approximation, SFA)，关于 SFA 理论的介绍详见第二章理论模型相关小节。

Lewenstein 等人提出的模型既包含了 Corkum 的经典解释，同时又考虑了电子作为波包在外场中的量子效应。该理论是针对低频激光场的，适用条件为 $\omega_0 \ll I_p \leq U_p < U_{psat}$ ，其中 U_{psat} 为饱和光强所对应的有质动力能。此外，Lewenstein 模型还包括几个前提假设条件：第一，只有基态对高次谐波辐射有作用，其它束缚态对谐波辐射的贡献忽略不计；第二，基态布居数量的衰减，即电离耗尽效应 (depletion) 忽略不计；第三，处在连续态的电子运动完全由激光场支配，原子核库仑势对电子的作用忽略不计（第三条即为 SFA 理论的基本思想）。

高次谐波辐射的时域信号由电子偶极矩 (dipole moment) $d(t)$ 来表征

$$d(t) = \langle \Psi(t) | \mathbf{r} | \Psi(t) \rangle \quad (1-20)$$

其中电子波函数 $|\Psi(t)\rangle$ 由 SFA 理论计算，并使用单电子近似 (single-active electron approximation) 模型 [97]。关于在 SFA 框架下计算高次谐波谱的更多细节，可参见第二章相关小节。由第二章的相关内容可知，虽然 Lewenstein 模型的计算是基于量子力学体系

的，但计算得到的方程却能够用半经典的轨迹概念来很好地阐释其物理内涵，并能够直观地解释清楚很多关于高次谐波的原理。下面就以一维模型为例做一下介绍。

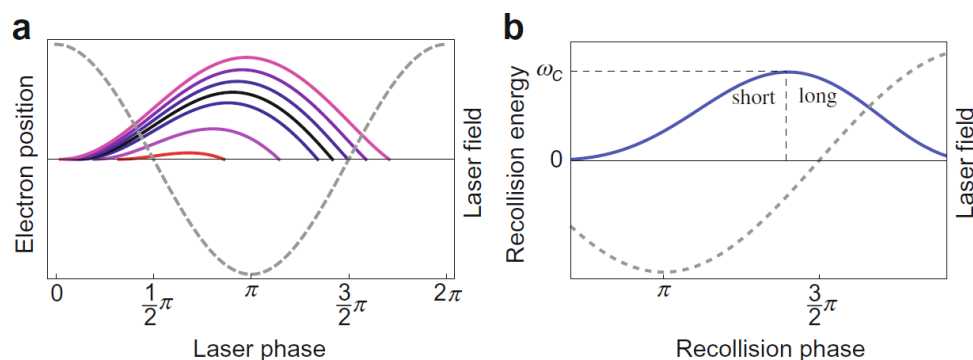


图 1-12 Lewenstein 模型计算得到的电子轨迹和电子返回母核时携带的动能。图片来自文献 [93]。

Fig 1-12 Calculated electron trajectory and recollision kinetic energy by Lewenstein model.

图1-12(a) 显示的是几条典型的经典电子轨迹（彩色实线），即电子位置随时间的变化情况，时间信息由激光场在一个周期内的相位来表征（灰色虚线表示激光场）。以位于中间黑色实线为分界线，可以看出电子轨道可分为两种，一种是早电离晚返回，即黑色实线上方的三条，另一种是晚电离早返回，即黑色实线下方的三条。这两种轨道就是高次谐波研究领域经常涉及的长轨道 (long trajectory) 和短轨道 (short trajectory) 的概念。不同时刻电离出去的电子，回到母核（即原点位置）的时刻也不同，而其所携带的动能也相应不同。如图1-12(a) 所示，不同颜色的轨道表征着不同的电子返回动能，从红色到蓝色（从外侧到内侧）表示动能的递增，最内侧的黑色实线则表示电子携有最大返回动能的那条轨道。图1-12(b) 更清楚地显示了电子返回携带能量与返回时刻之间的关系，从图中可以看出，在每半个激光周期内，每一个特定能量的高次谐波辐射都发生两次，分别来自长轨道电子的贡献和短轨道电子的贡献。但很明显存在一个特殊的能量，长轨道和短轨道对其的贡献发生在同一时刻，即两种轨道在时间维度发生了简并，该能量就是电子返回携带的最大动能，它与原子电离能之和便是前文所述的高次谐波谱截止能量 $\hbar\omega_{cutoff}$ 。

Lewenstein 理论从量子力学角度重新阐释并进一步发展了经典的三步模型。该理论适用于低频激光场，不足之处主要在于只考虑了基态，而没有考虑其它束缚态在高次谐波产生过程中的作用。事实上，束缚态的存在对高次谐波的产生是有贡献的，尤其是在特定的激光条件下，束缚态之间的跃迁会对特定阶次的谐波峰强度以及峰形产生明显的调制作用，关于这个话题，将在第三章中进行更多的讨论。

最后来介绍一下干涉模型。

Lewenstein 模型对高次谐波的描述是和量子力学概念中的量子跃迁和波包演化紧密

联系的，但同样也和经典图象中的轨迹概念联系在一起。对于单原子产生高次谐波的过程，还可以从另一个量子力学的视角来建立模型，那就是干涉模型。

干涉模型的基本思想是这样的：初始状态下，电子波函数都处于束缚态（基态），在激光场作用下，可能发生隧穿电离或多光子电离，一部分波函数成为了连续态，这部分连续态波函数在激光场作用下最后又返回母核并发生碰撞，此时电离部分波函数和原有的束缚态波函数就会发生干涉作用，形成相干的高频偶极响应，最终导致电子波函数回到基态并辐射出高次谐波光子。干涉模型描述了一个连续态波包和一个束缚态波包之间的干涉作用所产生的高次谐波，因此有时也被称为连续态—束缚态高次谐波 (continuum-bound HHG)。其原理的简单示意图如图1-13。

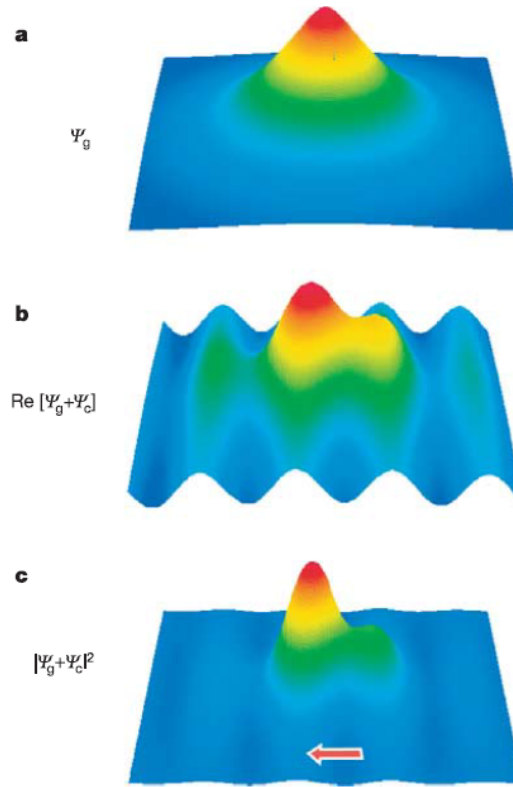


图 1-13 干涉模型示意图。图片来自文献 [98]。

Fig 1-13 Interference model of HHG.

电子和原子碰撞时的相干辐射可以由电子的瞬时偶极加速度来描述，加速度期望值可以根据 Ehrenfest 定理来计算 [99]：

$$\mathbf{a}(t) = \langle \Psi(t) | - \frac{\partial V(\mathbf{r})}{\partial \mathbf{r}} | \Psi(t) \rangle, \quad (1-21)$$

其中 $V(\mathbf{r})$ 是原子核库仑势。

假设波函数 $|\Psi(t)\rangle$ 是由一个动量为 \mathbf{p} 的平面波 $|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 和基态波函数 $|\psi_0\rangle$ 叠加而成的, 即

$$|\Psi(t)\rangle = c_1(t)|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle e^{-i\frac{p^2}{2}t} + c_0(t)|\psi_0\rangle e^{iI_p t}, \quad (1-22)$$

其中 $c_1(t)$ 和 $c_0(t)$ 分别是连续态和束缚态的含时布居比重系数。由此可知, 加速度大小为

$$a(t) = c_1^* c_0 \langle \varepsilon_1 | - \frac{\partial V(\mathbf{r})}{\partial \mathbf{r}} | \varepsilon_0 \rangle e^{-i(\frac{p^2}{2} + I_p)t} + c. c., \quad (1-23)$$

其中, ε_1 和 ε_0 分别代表连续态波包和束缚态波包的能量, *c. c.* 表示取复共轭。这个偶极加速度导致的振荡辐射频率期望值为 $\omega = \frac{p^2}{2} + I_p$, 也就是高次谐波的频率。

需要注意的是, 如果激光场太强, 导致在连续态波包返回母核之前束缚态布居就已经完全消失, 即发生电离耗尽的情况 ($c_0 = 0$), 那么这种相干高次谐波辐射就会消失 [100]。另外, 回撞母核的连续态波包也可能发生自发复合 (spontaneous recombination)。这种复合机制即使在电离耗尽情况下也可以发生。由于自发复合的最终相位是随机的, 因此产生的是非相干高次谐波辐射, 其辐射方向也是不固定的。

除了连续态—束缚态高次谐波机制以外, 两个连续态波包同样可以在原子核库仑势场内发生作用, 产生相干韧致辐射, 这种机制也被称为连续态—连续态高次谐波 (continuum-bound HHG) [96, 101]。连续态—连续态高次谐波的辐射强度往往比束缚态—连续态高次谐波要小好几个数量级, 这里不再做过多展开。

本小节较为详细地介绍了高次谐波生成的三种理论模型, 三步模型、Lewenstein 模型和干涉模型。需要指出的是, 这里介绍的理论计算都是针对激光场作用下的单原子响应, 而真实的高次谐波产生是激光与包含着大量原子分子的宏观介质进行相互作用, 必然包含高次谐波在介质中的传播效应。关于高次谐波宏观传播的理论计算, 将在第二章中予以介绍。

1.5 不同作用靶体系中高次谐波生成的研究

高次谐波生成实验的作用介质在起步时期选用的都是惰性气体原子, 后来又逐渐开始使用各种其它原子, 而后再拓展到一些小分子或其离子, 以及一些有机大分子。另外, 伴随着凝聚态物理和材料物理的蓬勃发展, 作用靶也不再限于气体, 以固体材料为作用靶的高次谐波实验现在也已经屡见不鲜。从原子到分子再到固体, 作用靶体系变得越来越复杂, 而可研究的对象和方向也变得越来越丰富和多样化, 相关的实验和理论研究都获得了长足的发展。本节将分别介绍原子、分子和固体作用靶体系中生成高次谐波的研究情况。

1.5.1 原子体系高次谐波

1987年, A. McPherson 等人首次在实验上产生了高次谐波, 该小组使用的激光作用介质是惰性气体。早期的大量高次谐波实验都选择惰性气体作为介质。由于惰性气体都是原子气体, 因此无论是实验还是理论, 原子体系高次谐波都是研究得最广泛和深入的, 本小节就对以原子体系为作用靶的高次谐波研究做一个梳理。

高次谐波实验常以惰性气体原子及它们离子或原子团簇为作用靶主要有两点原因: 一是惰性气体原子对很大的激光波长范围都是透明的, 吸收很少; 二是惰性气体原子的电离阈值 I_p 较大, 这有利于得到更高截止能量和阶次的谐波, 加宽谐波的平台, 而这也正是高次谐波研究最主要的课题之一。由公式 (1-18) 可知, 能有效拓宽平台的方法主要有两类: 一类是上文所述的选用电离能 I_p 较大的原子或其离子来作为工作介质, 另一类就是增大激光场的有质动力能 U_p , 这可以有两种方式来实现, 即增加光强或增大波长, 一般来说增大波长更为常用。从 1980 年代到如今, 高次谐波的研究者们借助超强超短激光脉冲技术的不断进步, 通过这些方法成功地拓宽谐波谱平台区, 能够获得的最高谐波光子能量也不断提升。

最早期的高次谐波截止阶次都只有几十阶, 如 A. McPherson 等人在氖气中观测到的 17 阶谐波 [88], M. Ferray 等人在氩气中得到的 33 阶谐波 [89]。几年后, 截止阶次可以高达 100 以上, 对应的谐波波长也突破到 10 nm 以下。1993 年, L'Huilier 小组用光强为 10^{15} W/cm² 的皮秒 Nd:YAG 激光脉冲与氖气作用产生了 135 阶谐波 (7.6 nm) [92]。而就在同一年, J. J. Macklin 等人用脉宽 125 fs 的钛蓝宝石激光在氖气中观测到了 109 阶谐波 (7.4 nm) [91], 值得一提的是, 这是首个使用飞秒激光进行的高次谐波产生实验。1997 年, Chang 等人将脉宽 26 fs 的 800 nm 激光脉冲作用于氦靶, 观察到 297 阶谐波 (2.7 nm), 能量为 460 eV [102]。同年, Spielmann 等人利用脉宽仅为 5 fs 的 780 nm 激光聚焦到氦气上, 观察到了光子能量超过 500 eV 的谐波, 对应的波长为 2.5 nm, 阶次高达 300 以上 [103]。这两个研究小组的实验成果具有重大的应用价值, 因为获得的高次谐波能量进入了“水窗”波段。所谓“水窗”波段, 就是指能量处于碳的 K 吸收边 (283.8 eV, 4.37 nm) 和氧的 K 吸收边 (532.1 eV, 2.33 nm) 之间的波长范围, 属于软 X 射线。生物体中的水 (氧元素) 不会吸收这个波段的光, 就如同透明的窗口, 而生物细胞中含有的碳元素却能吸收这些 X 射线, 因此, 利用“水窗”波段 X 射线和生物体进行相互作用, 就能有效地研究生物活体细胞中的动力学过程。2012 年, Popmintchev 等人使用中红外飞秒激光与高压氦气相互作用, 成功获取了光子能量高达 1.6 keV 的高次谐波, 谐波阶次更是惊人地超过了 5000 [104]。

由量子力学不确定性原理可知, 谐波频谱的带宽 $\Delta\omega$ 与谐波合成脉冲的宽度 $\Delta\tau$ 之间存在傅里叶变换极限关系 $\Delta\omega\Delta\tau \geq \hbar/2$ 。这意味着频域中更宽的谐波谱有利于合成时

域中更短的脉冲，现在的技术已经可以合成阿秒量级的脉冲，高次谐波的研究直接开创和推动了全新的超快科学领域——阿秒科学。关于高次谐波和阿秒科学，将在1.6节进行更多讨论。

高次谐波研究的另一大主要课题是提升高次谐波的产出率，也就是提高转化效率 (conversion efficiency)。早期的高次谐波生成实验，转化效率都非常低，一般都在 $10^{-10} \sim 10^{-8}$ 之间，能达到 10^{-7} 已经算比较高的了 [105]。转化效率低下是阻碍高次谐波大规模实用化的最主要问题。

从微观角度看，转化效率低的最主要物理机制是电子波包的量子扩散效应。从束缚态隧穿出来的电子波包在连续态中运动时，在垂直于激光偏振的方向上会有一定的波包扩散，扩散速度 $v_{\perp} \propto E^{1/2}/I_p^{1/4}$ ，其中 E 是激光电场强度 [106]。 v_{\perp} 越大，波包在空间上的扩散尺度就越大，波包返回到母核位置时，就只剩下越少的波函数部分能真正与母核复合。从宏观角度看，相位匹配 (phase matching) 方面的问题是导致转化效率低的主要原因。所谓相位匹配，就是指基频波和高次谐波的相位要一致，亦即 n 个基频光子的波矢 (wavevector) 之和要与 n 阶谐波光子的波矢相等，这样才能确保每个微观原子的辐射能相长干涉 (constructive interference) 而不是随机叠加，从而形成有效的宏观辐射。然而在实验中，有很多效应会使得相位匹配无法完全实现，比如激光脉冲在传输过程中的自散焦效应、高光强导致的自由电子背景过强、高次谐波自身在气体介质中传播时的吸收效应等等。

根据以上原因分析，人们通过不断的研究提出了多种提升转化效率的方法。

针对电子波包扩散问题，改善方法主要是在高次谐波辐射过程中对电子轨迹或量子通道进行操控，这往往可以通过引入双色或多色激光场来实现 [107–111]。从微观角度看，生成高次谐波的单原子响应过程 (电离、加速、复合) 对激光电场是十分敏感而且高度非线性的，多色混合激光场方法的原理正是利用这一点。还有一类与之相似的方法也是利用这个原理，称为反馈控制的脉冲整形技术。该技术是用可变形镜 (deformable mirror) 对驱动激光脉冲进行精确的整形，然后通过反馈控制不断对脉冲形状进行实时调控，从而控制原子在激光场中的电离过程，使得激光能量都集中转化到某一特定阶次的谐波上去，由此大大提升该阶次谐波的转化效率 [112]。

针对相位失配问题，虽然有很多传统的利用非线性晶体各向异性的相位匹配方法，但这类晶体对极紫外 (extreme ultraviolet, XUV) 和软 X 射线波段有极强的吸收，不适合用于气体高次谐波的相位匹配。因此要改善气体高次谐波相位失配问题必须使用其它特定方法。第一种方法是利用自导引激光技术实现相位匹配 [113]。利用超短激光脉冲传播时由于克尔效应而导致的自聚焦，可以和电离电子的自散焦效应互相抵消，只要将气体介质的压强控制在一个最合适的值，即可使这两个效应达到动态平衡，增大有效作用

光强, 从而提升某些阶次谐波的转化效率。第二种方法是利用毛细管波导技术实现相位匹配 [114]。这种技术是将传统的喷嘴式气体靶换成毛细管波导的静态气体靶, 使激光与气体的有效相互作用长度增加, 同样可以抵消自散焦效应引起的相位失配, 只要调整气压, 就能使某些阶次的谐波达到相位匹配。此外, 还可以通过调控毛细管口径、激光在波导中的传播模式等参数, 实现更为精确的相位匹配。Midorikawa 小组使用上述两种方法进行了实验研究, 都取得了较好的效果 [115, 116], 并成功地在氙气高次谐波实验中将特定阶次谐波的转化效率提升到了 $10^{-5} \sim 10^{-4}$, 获得了高达 $10 \mu\text{J}$ 的输出 [117]。以上所介绍的相位匹配方法, 作用气体的压强都是最主要的调控参数。一般而言, 不同能量的高次谐波的相位匹配对应着不同的最佳气体压强, 越高的谐波能量需要越高的最佳气压。然而, 一味地增加气压并非总是能够提升高能量谐波的转化效率。Krausz 小组发现 [118], 对于特定的气体介质, 当谐波波长大于某一阈值时, 上述相位匹配技术能使转化效率有明显提高, 但当谐波波长一旦低于该阈值时, 即使满足相位条件也无法再提高转化效率, 其主要原因是气体介质对高能量谐波光子会有吸收, 越高的压强就会有越强的吸收, 从而抑制转化效率的提高。以常用介质为例, 对于氙气, 该波长阈值约为 30 nm , 对于氙气, 则约为 10 nm 。因此, 要想有效提升高能谐波的转化效率, 就要探索新的匹配技术。下面要介绍的第三种方法就是其中一种。第三种方法是基于第二种方法的进一步改良, 即空间周期调制的毛细管技术。2003 年, 科罗拉多大学的研究小组提出了这种技术, 成功地实现了能量高达水窗波段的高次谐波的准相位匹配 (quasi-phase-matching, QPM) [119, 120]。他们在实验中使用充氙气的周期调制毛细管, 结果表明, 对于低能区谐波, $\eta_{mod} \approx 2 \sim 3\eta_{nor}$, 而对于高能区和截止区, $\eta_{mod} \approx 10 \sim 80\eta_{nor}$, 其中, η_{mod} 和 η_{nor} 分别表示使用调制毛细管和普通毛细管时的高次谐波转化效率。

如前所述, 人们为了获得更高能量和阶次的高次谐波光子, 往往采用更长波长的驱动激光, 随着光学参量放大 (Optical Parparametric amplification, OPA) 技术的发展, 实验上获取长波长激光脉冲已经不是难事, 长波长策略也确实成功获得了很高光子能量的高次谐波 [104, 121–123]。然而, 长波长激光也并非完美无瑕, 由于电子波包需要更长的时间才能回到母核, 波包扩散效应更强, 因此增加波长必然会导致高次谐波产出率的降低。因此, 高次谐波研究的一个重要课题就是探索高次谐波产出率或转化效率与驱动激光波长之间的具体依赖函数关系, 也被称为波长标度律 (wavelength scaling)。根据 Lewenstein 模型, 可以得到这个标度律应为 $\sim \lambda^{-3}$, 其中 λ 为驱动激光的波长 [96], 并且这个理论预估也得到了后来实验的支持 [122]。然而, 这个模型仅仅考虑了电子的波包扩散效应, 没有考虑诸如基态耗尽等其它效应, 因此并不完全精确。2007 年, Tate 等人通过数值求解 TDSE 和 SFA 理论计算, 发现对于较长的波长 ($800 \text{ nm} \sim 2000 \text{ nm}$), 高次谐波的产出率随波长的增加下降得远远快于 Lewenstein 模型的预期, 大约在 $\lambda^{-5} \sim \lambda^{-6}$

范围 [124]。就在同年, Schiessl 等人采用更为精密的格点, 并通过两种不同的 TDSE 求解方法进行了计算和验证, 他们发现产出率随波长变化的曲线中具有快速振荡的结构, 而将振荡结构进行取均值平滑后, 得到的标度律就与 Tate 小组的结果相近, 他们将这种振荡结构归因于多个量子轨道之间的干涉 [125]。不久后, Frolov 等人提出了一个适合解析求解的量子模型, 可以得到与 Schiessl 小组相吻合的计算结果, 并可以对快速振荡结构给出全量子解释。另外, 他们还探究了束缚态波函数的对称性对波长标度律的影响 [126]。2009 年, 加拿大的研究小组用波长在 800 nm ~ 1850 nm 范围的激光与惰性气体原子进行作用, 他们的实验结果表明, 产出率随波长增加的下降速度比上述理论预期更快, 达到了 $\lambda^{-6.3 \pm 1.1}$ (氙原子) 和 $\lambda^{-6.5 \pm 1.1}$ (氩原子) [127]。当然, 也有理论计算表明, 如果采用一些特殊的激光场, 则可以有效改善高次谐波转化的波长标度律。例如, 利用空间非均匀分布的激光场, 则波长标度律可以提升到 λ^{-4} 左右 [128]; 利用双色激光场, 平台区谐波的波长标度律可以提升到 $\lambda^{-4} \sim \lambda^{-3}$ [108]。近年来, 也有理论研究将决定谐波产率的两大因素 (电子波包返回几率和返回电子与母核复合几率) 分开考察, 并着重研究电子波包返回几率随波长的变化关系 [129], 为研究高次谐波产率的波长标度律提供了新的视角。

库仑势效应是高次谐波研究的又一大重要课题。在理论计算中, 为了简化计算或得到解析解, 往往都在电子电离后就忽略原子核库仑势, 而库仑势实际上又是存在的, 尤其是当激光场不太强时, 库仑势效应就更会凸显出来。Brabec 等人通过理论计算指出, 库仑聚焦效应对非时序双电离、高次谐波、阈上电离等诸多强场原子过程中都有重要影响 [130]。在计算中, 引入库仑势会导致数学上的奇点, 称为库仑奇点 (Coulomb singularity), 并且往往在数值计算中通过引入软核参数 (soft-core parameter) 来加以消除。Gordon 等人对氢原子采用一维到三维的各种库仑势场进行了解析计算和数值计算并加以比较, 指出一维势要想较好地模拟三维势, 就必须有一个尖锐的奇点, 并从数学解析角度, 指出氢原子高次谐波平台结构的出现和库仑奇点的存在密切相关 [131]。Shafir 等人的实验和理论计算都表明原子核库仑势对高次谐波产生的每个步骤都起到重要作用, 从而影响最后辐射谐波的时空特性 [132]。

使用椭圆偏振的驱动激光往往可以让库仑势效应得到很好的体现。库仑势引入计算模型后, 可以很好地解释近阈谐波 (near-threshold harmonic) 的来源以及近阈谐波和激光场椭圆偏率之间的反常依赖关系, 并与实验结果吻合得很好 [106], 库仑势对低阶次谐波的椭圆偏率也会有调制作用 [133]。事实上, 库仑势对阈下谐波和阈上谐波的调制作用还不尽相同, 关于这一点, 将在本文的第三章予以详细讨论。

另外, 通过椭圆偏振光来探究库仑势效应并不仅限于高次谐波的研究, 也被用于研究隧穿电离 [134]、高阶阈上电离 [135]、非时序双电离 [136]、多电子电离 [137] 等强场

物理过程；库仑势效应也不仅会反映于高次谐波谱，还会反映于光电子角分布谱 [138, 139]、电子能谱 [140]、电子动量分布谱 [141, 142]、原子核动量分布谱 [143] 等等。

1.5.2 分子体系高次谐波

由于分子拥有两个或多个原子核，并且不再具有各向同性，因此也就比原子体系拥有更多的可供探究的新奇效应，本小节就针对分子体系高次谐波的研究做一些介绍。

到上世纪 90 年代中期，高次谐波实验已经经过了几年的发展，人们对作用靶介质的选取开始不限于惰性气体原子，一些小分子逐渐成为了新的研究对象。

1994 年，Liang 等人以氢气 (H_2)、氧气 (O_2)、氮气 (N_2) 等双原子分子为介质进行高次谐波生成实验，并与惰性气体原子的结果进行了比较，他们提出，不同分子体系生成高次谐波的转化效率之所以有差异，关键在于各分子的静态极化率 (static polarizability) 不同，而分子的质量和电离能则不是主要影响因素 [144]。不久后，高次谐波转化效率的实验研究介质又拓展到了一些多原子分子 [145]、有机分子 [146] 和卤族元素分子 [147]。和原子情形一样，提升转化效率也是分子高次谐波研究的一大重要主题，而像利用双色激光场操控电离过程这类原子体系中常用的方法也被理论证明在分子体系依然有效 [148]。

除此之外，分子体系高次谐波研究更受关注的是一些关于分子特有物理效应的课题。

第一个是分子的排布取向性。2000 年，Marangos 小组通过数值计算预言了分子轴取向对高次谐波产额会有重要影响 [149]，并在 2001 年就成功进行了首个高次谐波和分子轴取向依赖关系的实验研究，他们用 300 ps 的激光脉冲对二硫化碳、氮气、己烷等气体分子进行准直 (alignment) 排布，再用 70 fs 的激光脉冲去和经过准直分子体系进行作用来产生高次谐波，他们发现，相比于随机排布的分子，经过准直分子体系可以产生更强的高次谐波，并且可以由激光强度来操控调制 [150]。经过特别制备的准直分子体系中还能在线偏振激光的驱动下生成椭圆偏振的高次谐波 [151]。在准直分子体系生成高次谐波的过程中，量子干涉是一个重要的效应，引起了很多关注。Lein 等人通过对 H_2 及其离子的计算，从理论上预言，高次谐波强度随着分子的原子核间距以及分子轴取向的变化趋势中之所以会出现极大值和极小值，是因为在分子体系中，电子波包可能撞到不同的原子核而发生复合，从而不同原子核的复合事件之间会有干涉 [152, 153]，而这种复合过程中的分子内干涉效应也在准直 CO_2 分子气体的实验中被观测到 [154]，并可能导致高阶谐波的相位突变和反转 [155]，还有实验通过调整驱动激光的椭圆率来对干涉行为进行了有效的操控 [156]。当然，干涉效应也不仅仅存在于分子内部，不同分子之间也会有干涉，有理论计算表明，沿着不同角度排布的分子之间的干涉会对高次

谐波谱产生明显的调制 [157], 并可以解释实验上观测到的截止能量反常现象 [158]。另外, 分子被激光场电离过程中, 不同的电离通道之间也会有干涉, 从而形成高次谐波谱中的极值 [159], 相干通道和非相干通道之间存在的干涉则可以用于观测叠加电子态相干性随时间的演化 [160]。除了上述的量子干涉之外, 还有其它一些因素也导致了分子的排布取向性对高次谐波产生重要影响和调制效应, 如分子的轨道对称性 [161]、部分准直分子 (partially aligned molecules) 的角分布与交叠程度 [162]、激发态的共振效应 [163] 等等。

第二个是分子的原子核间距以及核的运动。在分子体系高次谐波理论研究中, 人们为了方便计算, 往往使用玻恩—奥本海默近似 (Born-Oppenheimer approximation, BOA) [164, 165], 即认为分子的总波函数可以拆分为电子波函数与原子核波函数的乘积, $\Psi_{tot} = \psi_e \times \psi_n$, 并且在计算电子波函数时, 不考虑原子核的动力学演化, 由此将电子与核的自由度分开而简化运算。这种计算可以认为是一种绝热近似计算。当外加激光场是超短超强脉冲时, BOA 就与真实情况相差较大了, 随着理论计算方法的发展和计算机性能的提升, 越来越多的研究开始在非玻恩—奥本海默近似 (Non-Born-Oppenheimer approximation, NBOA) 的框架下进行, 也即充分考虑原子核波包与电子波包的耦合。在 NBOA 框架下的计算更贴近真实物理情况, 也会出现很多使用 BOA 计算时不会出现的效应。这方面理论研究所使用的分子体系往往都是双原子分子或其离子, 以氢及其同位素氘 (H、D、T) 最为常见。Lein 通过对 H_2 的计算分析, 发现高次谐波信号强度与原子核初态和末态波函数之间的相关函数的模平方成正比, 因此原子核波包的运动会高次谐波的强度产生明显的调制作用 [166], 并且得到了实验验证 [167]。除了强度调制以外, Bian 等人通过对 H_2^+ 和 D_2^+ 的计算发现原子核的运动也会对高次谐波产生频率调制, 由此可以通过谐波频率的移动来探测原子核的动力学过程 [168]。另外, 和 BOA 计算相比, 考虑原子核运动还会带来的效应包括高次谐波的频谱展宽、截止频率提前和截止区加宽等 [169, 170]。利用泵浦—探测机制, 可以通过高次谐波谱来观测相干叠加的电子波包与原子核波包的阿秒动力学过程 [171]。考虑核的运动, 也可以更好地研究高次谐波在空间中的分布 [172]。此外, NBOA 分子高次谐波理论研究也关注一些在原子体系里的重要主题, 如 Liu 等人计算了 H_2^+ 体系中的波长标度律 ($\lambda^{-7} \sim \lambda^{-8}$) [173]; Lara-Astiaso 等人通过 H_2^+ 和 T_2^+ 的比较, 提出负啁啾脉冲与轻核作用可以有效提升截止频率 [174]。以上所述的都是由两个相同原子构成的对称分子或离子, 当然也有研究是针对由不同原子构成的非对称分子或离子的。Kreibich 等人计算了 HD 分子的高次谐波辐射谱, 由于两个原子核的质量不同, 因此如果考虑核的运动, 就能利用其运动快慢不一导致的不对称性来产生偶次谐波, 并且在高能区的偶次谐波强度和奇次谐波强度可以达到同一数量级 [175]。Miao 等人通过对 HeH^{2+} 的计算, 发现多通道干涉在非对称分子

体系高次谐波产生过程中具有十分重要的作用 [176], 为先前采用 BOA 的多通道干涉效应计算提供了新的理论补充 [177]。

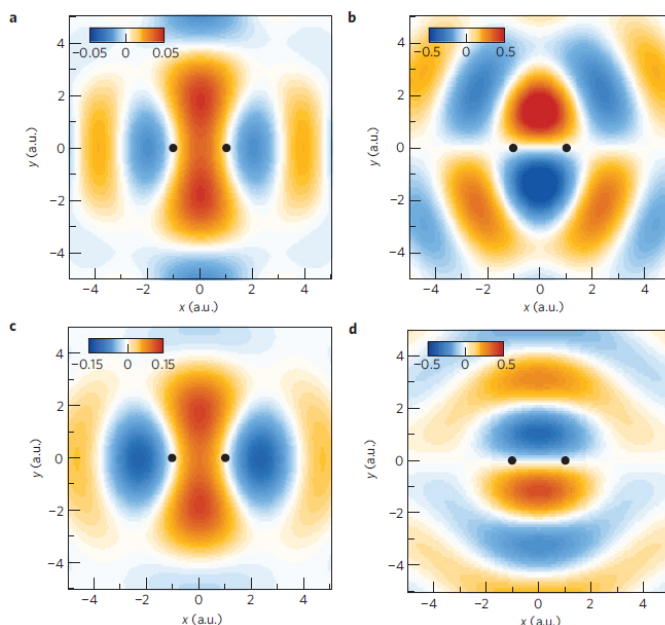


图 1-14 N_2 分子 HOMO 和 HOMO-1 轨道波函数的断层重构成像。(a) 由实验数据进行重构得到的 HOMO 轨道。(b) 由实验数据进行重构得到的 HOMO-1 轨道。(c) 理论模拟重构得到的 HOMO 轨道。(d) 理论模拟重构得到的 HOMO-1 轨道。图片来自文献 [178]。

Fig 1-14 The tomographic reconstruction imaging of the HOMO and HOMO-1 wavefunction of a N_2 molecule. (a) Reconstructed HOMO wavefunction with the experimental data. (b) Reconstructed HOMO-1 wavefunction with the experimental data. (c) Reconstructed HOMO wavefunction with theoretical simulation. (d) Reconstructed HOMO-1 wavefunction with theoretical simulation.

第三个是分子高次谐波的重要应用——成像技术。分子的最高占据轨道 (highest occupied molecular orbital, HOMO) 是决定其化学性质和化学反应过程的最关键因素, 因此分子最高占据轨道的波函数分布是受到广泛关注的研究热点。2004 年, Itatani 等人开创了利用高次谐波对分子轨道进行重构成像的先河, 他们用泵浦光对 N_2 分子进行准直, 再用探测光与 N_2 作用产生高次谐波, 调节分子轴与探测光的夹角, 分别记录各个夹角下的高次谐波谱, 并与参照靶氩原子在相同激光条件下生成的高次谐波谱进行比较, 最后利用反 Radon 变换 (inverse Radon transform) 成功地重构出了 N_2 分子的最高占据轨

道。在这项开创性研究工作中，他们还指出了这种基于高次谐波的方法在观测电子波包阿秒量级超快运动上的潜在应用价值 [98]。此后，这类成像技术又推广到最高与次最高占据轨道的叠加态，如 Haessler 等人通过高次谐波的振幅和相位测量，分别重构出了 N_2 分子的 HOMO 和 HOMO-1 轨道（见图1-14） [178]；Smirnova 等人用类似方法对 CO_2 分子的 HOMO 和 HOMO-2 叠加态波函数进行了重构成像，由此得以分析多个分子轨道在谐波产生过程里的作用和多电子超快动力学 [179]。基于分子高次谐波的成像技术也不仅仅局限于简单小分子，在探测多原子体系的轨道结构和动力学过程方面同样得到了成功应用，如 N_2O_4 分子 [180]、 C_3H_4 分子（丙二烯） [181] 等等。和原子情形相似，分子高次谐波成像技术还有一个受到关注的方向就是库仑势效应。在重构成像的过程中，考虑库仑势与激光场的耦合，可以更准确地描述电子从电离到复合过程中的行为，得到更精确的谐波相位，从而获得更好的分子轨道成像效果 [182, 183]。对双原子体系来说，若在重构时使用库仑修正，即用双中心库仑波（two-center Coulomb, TCC）表示电子连续态，可以有效消除常用的平面波近似带来的成像伪信号 [184]。若为非对称分子（如 CO），则可以通过分解奇次和偶次谐波来进行成像 [185]。

1.5.3 固体材料高次谐波

前面小节所介绍的原子和分子高次谐波研究所使用的工作介质都是气体，而随着材料物理的发展，以固体材料为工作介质的高次谐波研究也得到了开展并逐渐受到关注，本节就对固体材料中生成高次谐波的相关研究做一个介绍。

早在上世纪 90 年代，就已经出现了一些激光与固体作用生成高次谐波的实验研究，那时的实验主要都是激光和金属或电介质表面作用，如金膜、铝膜、玻璃面等，一般来说，这种反射模式下生成的高次谐波截止能量普遍较低，并且转化效率也十分有限 [186, 187]。当然，在反射模式下，也有研究组通过使用超高光强和特殊包膜表面获得了较高谐波截止能量和转化效率 [188]。

到了本世纪初，开始出现了透射模式的固体高次谐波实验。Chin 等人用波长 $3.9 \mu m$ 的激光透射硒化锌 (ZnSe) 半导体块状晶体，观测到了高次谐波，但其截止能量仍然较小（7 阶），低于 ZnSe 能带边缘（band edge），属于微扰谐波（perturbative harmonics） [189]。

真正意义上的非微扰高次谐波直到 2011 年才由 Ghimire 等人首次获得，他们用波长为 $3.25 \mu m$ 的少周期激光透射氧化锌 (ZnO) 块状晶体，成功观测到了截止阶次高达 25 阶的谐波，截止能量远高于 ZnO 能带边缘，他们还发现截止能量与激光的峰值电场强度成线性关系，这一点和气体原子情形有很大的不同 [190]。他们的这项成果引发了研究者们对于固体材料产生高次谐波的浓厚兴趣，后续的实验和理论研究都得到了广泛的开展，相关工作介绍可参见第四章。

理论研究方面，用于计算固体中的高次谐波的理论模型主要有两种，分别是单电子模型和多电子模型。单电子模型类似于原子情形中的单电子近似方法，将固体中大量电子与原子核的相互作用行为看成只有一个活动的电子在其余原子核构成的周期性势场中运动，这个思想最早由 F. Bloch 提出，这个活动电子也被称为 Bloch 电子 [191]。单电子模型就是用各种周期性或准周期性势场来模拟固体中的周期性结构，这种模型最典型最直观的一种就是在上世纪 30 年代由 R. Kronig 和 W. G. Penney 提出的 Kronig-Penney 模型 [192]，也在早期的固体高次谐波理论研究中就得到了应用 [193]。多电子模型则是建立在二次量子化 (second quantization) 的基础上，使用电子的产生与湮灭算符来描述电子运动，结合 Hartree-Fock 方法对多体行为进行解耦合，从而得到半导体 Bloch 方程 (semiconductor Bloch equations, SBE) [194]，这种模型同样也在固体高次谐波的研究中得到了有效应用 [195]。关于理论计算模型的更多介绍，尤其是 Kronig-Penney 模型的详细描述，将在第四章相关小节给出。

无论是实验还是理论研究结果，固体高次谐波都表现出了诸多与原子分子高次谐波迥异的性质，上文所提及的截止能量与激光场强成线性关系就是其中之一。之所以会这样，关键在于固体介质和原子分子气体介质有两点根本性的不同：一是固体介质中的粒子数密度远远大于气体介质，二是固体介质具有周期性的势场而不是原子核势场或简单叠加而成的分子势场。庞大的粒子数密度可以提升高次谐波的转化效率 [196]。周期性势场则使得电子可以与其它原子核发生再散射甚至多次再散射，可以提升截止能量，并可能出现不止一个平台区 [197, 198]。另外，在固体介质中，仅需一束圆偏振驱动激光就能产生椭圆偏振的高次谐波，这在原子体系情形中也是不会出现的，关于这个性质，在第四章中还会有更多详细阐述。

1.6 高次谐波与阿秒科学

1.6.1 高次谐波的相干性

上一节分别对原子、分子和固体作用靶体系中生成高次谐波的主要研究发展情况做了介绍。事实上，有一些研究热点是在各种不同作用靶体系的研究里都受到关注的，比如双色场对高次谐波的产率、偏振等特性的影响和调控 [148, 199–202]；高次谐波生成和传播过程中的非绝热 (nonadiabatic) 动力学过程以及非绝热效应 [203–207] 等等。其中，高次谐波最重要也最为广受关注的特性，莫过于它的相干性。

高次谐波的生成机制决定了它可以具备远远优于普通光源的高度相干性，另外，相对于同步辐射加速之类的需要依靠超大型设备的相干光源而言，可以较为容易地在实验室中获取，也被称为台面光源 (tabletop light source)，这也正是高次谐波被认为是极佳的

XUV 和 X 射线光源的原因。

在实验首次获得高次谐波后的几年内，它的相干性就受到了广泛的关注。1995 年，Salières 等人通过理论计算提出，通过调节激光焦斑和作用介质的相对位置可以实现对高次谐波相干性的控制和最优化 [208]。

随后，多个研究组对高次谐波的空间相干性和时间相干性进行了测量。1996 年，T. Ditmire 等人的实验表明，高次谐波的空间相干长度比 X 射线激光高出一个数量级以上 [209]。1998 年，Wahlström 小组的时域相干性测量表明，高次谐波脉冲具有很长的相干时间，几乎在其整个脉宽范围内都是相干的，并且分布在远场不同空间区域的高次谐波有着不同的相干时间 [210]，并且又在后续实验中探究了相干时间随着谐波阶次、激光强度和聚焦位置的变化关系 [211]。这些实验结果使人们得以对高次谐波的空间相干性和时间相干性进行综合分析，并形成了更为系统化的认识 [212]，推进了这种台面相干光源的技术应用。2000 年，Bartels 等人在实验上获得了空间全相干的高次谐波光源，并结合 Gabor 全息法将它用于显微成像，同时还指出了这种高次谐波对于超高分辨率精细成像和测量技术的巨大应用价值 [213]。也正如所预期的，具有高度相干性的高次谐波成为多种超高分辨显微成像技术的理想光源，典型的如相干衍射成像 (coherent diffraction imaging, CDI) 技术，利用高次谐波，现在的 CDI 技术已经成功达到了接近光源波长 [214] 甚至亚于光源波长 [215] 的超高空间分辨率。

1.6.2 高次谐波合成阿秒脉冲

利用高次谐波的相干性，人们已经开发了诸多应用技术，如上一小节提到的显微成像和测量等技术，而对于物理学研究本身来说，高次谐波最重要的应用就是合成阿秒脉冲。在 1.2 节已经提到，人们在成功获得飞秒量级的超短激光脉冲后，遇到了“飞秒壁垒”，很长时间内无法再进一步将脉宽压缩到亚飞秒和阿秒量级。对于传统的生成超短激光脉冲的方法来说，要得到更短的脉冲，只能千方百计地去产生更宽带的光谱以及追求更有效的色散补偿，但这些对于阿秒脉冲的产生仍然显得捉襟见肘。由于传统方法受到诸如介质增益带宽、参量放大、锁频锁相、色散补偿等方面技术的诸多限制，因此要想产生阿秒脉冲，就必须探索非传统的新方法。

这方面的理论探索可以追溯到上世纪 90 年代。当时 Hänsch 等人提出利用傅里叶合成 (Fourier synthesis) 的方法有可能产生阿秒量级的激光脉冲 [216, 217]，其基本思路是模拟锁模激光器，试图产生一个光学频率梳，满足各个峰之间频率间隔相等，并且相对相位可控，而后通过傅里叶变换进行时域合成。而 Farkas 和 Tóth 则从当时刚刚兴起的高次谐波研究中得到启发，发现高次谐波谱中天然存在着等频率间隔的光梳 ($2\omega_0$)，而且还具有很好的相干性和很宽的光谱范围 [218]。假设各阶谐波都具有相等的强度和相

位, 则相干叠加 N 次谐波能够产生超短脉冲波形, 每个基频光光学周期内有两个窄峰, 峰值强度正比于 N^2 。

随后, P. B. Corkum 和 M. Ivanov 等人通过理论计算, 提出使用双色激光场并通过调节频率之比和相对相位等方法来形成一个椭圆率随时变化的椭圆偏振光, 就能操控高次谐波生成过程中的电子轨迹, 从而产生亚飞秒辐射脉冲, 并从一个阿秒脉冲链 (attosecond pulse train, APT) 中挑选出单个阿秒脉冲 (single attosecond pulse, SAP) [219, 220]。Platonenko 和 Strelkov 提出椭圆率随时变化的椭圆偏振光也可以由一束线偏振光通过线性光学变换组合来构造, 从而达到类似的效果 [221]。1996 年, Antoine 等人的理论计算表明, 单原子在激光场中生成的高次谐波可以形成多个 APT, 对应于不同的电子轨迹, 而谐波在介质中的传播则可以挑出其中的一条轨迹, 从而产生一个 APT [222]。不久后, Christov 等人的三维模型计算表明, 短于 10 fs 的激光脉冲可以产生宽带高次谐波辐射, 再通过宽带滤波就能得到约为 100 as 的脉冲 [223]。

这些理论的核心思想都是利用高次谐波相干叠加来合成阿秒脉冲链或单个阿秒脉冲, 后来被实践证明是相当有效的。2001 年, Krausz 研究组成功获得了脉宽 650 as 的单个阿秒脉冲 [224], 标志着超短激光脉冲技术进入了阿秒时代。同年, Paul 等人产生了每个单脉冲脉宽 250 as、相邻脉冲间隔 1.35 fs 的阿秒脉冲链 [225]。2003 年, Mairesse 等人产生了脉宽 130 as 的脉冲链 [226]。2004 年, Krausz 研究组又产生了脉宽 250 as 的单个阿秒脉冲, 因其可以为研究原子中的电子动力学提供足够高的时间分辨率, 也被称为“原子瞬态记录仪” (atomic transient recorder) [227]。2006 年, Sansone 等人采用偏振门技术, 用 5 fs 的驱动激光获得了脉宽仅为 130 as 的单个阿秒脉冲, 已逼近单个 XUV 光学周期 [228]。两年后, Krausz 研究组采用波形精密受控的 3.3 fs 驱动激光, 利用单周期非线性光学过程产生了 80 as 的单个脉冲 [20]。2010 年, Ko 等人使用阿秒啁啾 (attochirp) 补偿技术获得了脉宽 63 as 的阿秒脉冲链 [229]。同年, Chen 等人获得了当时最大带宽的高亮相干辐射 (带宽高达 300 eV), 若能进行有效阿秒啁啾补偿, 则理论上可合成脉宽仅为 11 as 的脉冲 [230]。2012 年, 常增虎研究小组结合双光学门技术和基于相位失配的阿秒啁啾补偿技术, 成功产生了脉宽 67 as 的单个阿秒脉冲, 创造了最短单个阿秒脉冲的世界纪录并保持至今 [231]。

随着超宽带光谱产生技术和阿秒啁啾补偿技术的发展, 超短脉冲的合成技术必将在未来得到进一步的发展。

1.6.3 阿秒科学

电子运动是纷繁复杂的微观现象的本质, 因此了解和掌握电子的运动是探索和理解微观世界各种奇妙现象的根本所在。对于不同的物理过程, 电子运动的时间尺度也不

同，长至几十飞秒，短至几阿秒。飞秒激光技术为人们提供了许多间接观测超快过程的方法，而阿秒脉冲技术的诞生则使人们得以直接观测阿秒时间尺度的电子超快动力学过程，为我们观察微观世界带来了质的飞跃，也开创了阿秒科学这一全新的科研领域。本小节将对阿秒脉冲的产生和测量，以及它在阿秒科学领域的应用做一下简要介绍。

阿秒脉冲可分为阿秒脉冲链和单个阿秒脉冲(也称孤立阿秒脉冲, **isolated attosecond pulse, IAP**)。阿秒脉冲链的产生相对较为容易，这是因为高次谐波的平台区频谱本身就具有等频间隔的峰，由傅里叶变换的性质易知，将平台区的频谱进行时域合成即能得到阿秒脉冲链。单个阿秒脉冲的获得则需要连续谱，位于高次谐波的截止能量区，对应于时域中的单次辐射事件，因此也需要使用相对复杂的技术，下面着重介绍一下实验上获取单个阿秒脉冲的方法。

目前，单个阿秒脉冲的产生方法有两大类。

第一类称为滤波法，即用带通滤波的方式挑出截止能量区的高次谐波。由于光子能量最大的谐波仅在激光场最大峰值附近时刻辐射，因此辐射时间就限定在半个激光周期里。这类方法由 Christov 等人在 90 年代晚期从理论上提出 [223]，在短短几年后就在实验上获得了很大的成功 [20, 224]。值得一提的是，虽然滤波法已经被实验证明很有效，但是这类方法必须要用 CEP 高度稳定的短于 5 fs 的少周期驱动激光，这对实验所用的激光光源性能提出了很高的要求。

第二类可统称为时间门 (temporal gating) 方法，即通过控制激光场将高次谐波辐射局限在一段极短的时间内，具体还可以分为好几种方法。

第一种是偏振门 (polarization gating, PG)，它利用高次谐波产生过程对驱动光椭圆偏率十分敏感这一特性，其基本思想就是产生一束椭圆偏率随时间变化的光 [219]，具体实现方法要靠两束频率接近而偏振方向互相垂直的线偏振光组合，假设两束光频率分别为 ω_{L1} 和 ω_{L2} ，则合成光的椭圆偏率 $\varepsilon(t)$ 可描述为 $\varepsilon(t) = \tan(\delta\omega_L \cdot t/2)$ ，其中 $\delta\omega_L = |\omega_{L1} - \omega_{L2}|$ 。这样，合成激光脉冲只在特定的极短时间范围内是线偏振的 ($t \simeq n\pi/\delta\omega_L$, n 为整数)，而在这个时间范围之外则很快由线偏振转变为圆偏振的，从而有效限制了高次谐波辐射的时间范围。后来，Kovacčev 和 Tcherbakoff 等人在此基础上又做了改进，利用 Michelson 干涉仪使这两束线偏振光之间有一个时间延迟，从而将偏振门的宽度变为灵活可调的而不像原来那样只能是固定的 [232, 233]。利用这种干涉仪 PG 方法，结合 CEP 稳定的少周期激光，Sansone 等人首次获得了单个阿秒脉冲 [228]。PG 技术还有一些别的特殊实现方法，如利用群延迟色散 (group delay dispersion, GDD) [234]、利用准直分子气体中的双折射效应 [235] 等，在此不做展开。

第二种是双光学门 (double optical gating, DOG)，它是建立在偏振门与双色场方法基础上的一种技术。所谓双色场方法，一般是针对前文提到的光谱滤波法而言，传统的

滤波法只用单色驱动光，而双色场则在基频光上再叠加一束很弱的倍频光，一般为 800 nm 光和 400 nm 光组合。理论计算表明 [236, 237]，双色场可以有效地调制电子轨迹和最大返回动能，从而使最高能量的谐波辐射每隔一个（基频）光学周期才出现一次，而不像单色光情形时那样每隔半个光学周期出现一次，这样使得阿秒脉冲链的相邻两个脉冲间隔是单色场情形的两倍，从而驱动光的脉宽也能相应地放宽到原来的两倍左右，降低了对光源的要求。双色场方案也在实验上得到了成功应用 [238]。然而，双色场方法需要经过带通滤波，这将减少谐波谱的带宽利用率而不利于压缩阿秒脉冲的脉宽。2007 年，常增虎小组将双色场方法融入偏振门技术，理论上首次提出了 DOG 方法 [239]，这种方法的核心就是将偏振门的宽度调节到恰为一个基频光周期，既放宽了对光源的脉宽要求，又避免了滤波步骤，比传统 PG 方法和双色场方法都更有利于合成单个阿秒脉冲。利用 DOG 方法，该小组在实验上用 9 fs 左右的驱动光成功地先后获得了 130 as [240] 和 107 as 的单个阿秒脉冲 [241]，此外，该小组又提出了广义双光学门方法 (generalized DOG, GDOG)，更有利于使用较长的驱动光脉冲，凭借 GDOG 方法，他们用长达 28 fs 的驱动光获得了 148 as 的单个阿秒脉冲 [242]。

第三种是电离门 (ionization gating, IG)，它是利用激光脉冲上升沿对气体进行电离，增加等离子体密度，使得相位失配，从而抑制激光下降沿导致的谐波辐射事件 [243–245]。还有一种改进的方案，是采用超过电离饱和光强的超强激光，使得气体在脉冲上升沿就发生电离耗尽，从而大大抑制后续的谐波产生。这种方案由 Cao 等人于 2006 年在理论上提出 [246]，2010 年，Ferrari 等人采用这种方法并结合激光空间滤波技术，成功产生了高能量 (nJ 量级) 的单个阿秒脉冲 [247]。

当然，除了光谱滤波和时间门这两大类主要方法以外，研究者们也提出了其它一些各有优点的不同方法来产生宽带超连续光谱，以此合成单个阿秒脉冲，例如使用相对相位受到精确调控的双色场 [248]，使用 800 nm 光与 1600 nm 左右的中红外波段激光的组合场 [249, 250]，在单色场中采用非对称分子 [251]，使用波前旋转 (wavefront rotation) 或称为阿秒灯塔方法 (attosecond lighthouse) [252] 等等，在此不再展开阐述。

以上介绍了阿秒脉冲链和单个阿秒脉冲的产生方法，下面简单介绍一下阿秒脉冲的表征测量方法。阿秒脉冲由于脉宽很短而频谱很宽，因此一般传统的测量激光脉宽的技术无法对其进行直接测量，需要一些特殊方法。

测量阿秒脉冲链的脉宽，常用的方法是自相关测量法。2003 年，Tzallas 等人利用氦原子的双光子电离过程，首次用自相关法测量了阿秒脉冲链的脉宽 [253]。几年后，Midorikawa 小组利用 N_2 分子吸收两个阿秒脉冲链光子从而发生双电离并引起库仑爆炸，实行了自相关干涉测量法，对阿秒脉冲链进行了有效的脉宽测量，并观测到了相邻脉冲之间的相位锁定 [254, 255]。

测量单个阿秒脉冲的脉宽，常用的方法是阿秒脉冲完整重构的频率分辨光学门法 (Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts, FROG CRAB) [256]，这种方法是将原来测量飞秒脉冲脉宽的频率分辨光学门法 (FROG) [257] 推广到了阿秒脉冲。由 FROG CRAB 法可以得到一幅时频谱图，从该谱图中，利用特定的算法，即可重构出超短脉冲在时域的振幅和相位波形，常用的有主分量推广投影算法 (principal component generalized projections algorithm, PCGPA) [258]、直接电场重构的光谱相位干涉测量法 (spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction, SPIDER) [259]、频率振荡滤波相位恢复法 (phase retrieval by omega oscillation filtering, PROOF)[260]。在这些经典的传统算法基础上，近两年来人们也提出了一些新算法，如 Volkov 变换推广投影算法 (Volkov transform generalized projections algorithm, VTGPA) [261]、宽带脉冲相位恢复法 (phase retrieval of broadband pulses, PROBP)[262] 等。图1-15所示的表格列出了当今世界前沿的单个阿秒脉冲的产生技术、特征参数及其表征测量方法。

Gating method	Gas	Central energy (eV)	FWHM bandwidth (eV)	FT limit (as)	Measured duration (as)	Compression method	Characterization method	Refs
Amplitude gating	Ne	80	28	75	80	Zr foil	FROG-CRAB	7
Ionization gating	Xe	25	8	130	155	Al foil	FROG-CRAB	25
Polarization gating	Ne	100	22	45	130*	Al foil	FROG-CRAB	6, 41
DOG	Ne	100	170	16	67	Zr foil, phase matching	PROOF	4, 5
Interferometric PG	Kr	26	15	260	N/A	None	N/A	44
Generalized DOG	He	200	60	20	148*	Al foil	FROG-CRAB	29, 46
Attosecond lighthouse	Ne	50	35	47	N/A	None	N/A	32

*The pulse durations for polarization gating and generalized DOG were measured using attosecond pulses generated in Ar gas. PG, polarization gating; FWHM, full-width at half-maximum; FT, Fourier transform.

图 1-15 当今前沿超宽带单个阿秒脉冲的特征参数。图片来自文献 [263]。

Fig 1-15 Characterization parameters of ultrabroadband isolated attosecond pulse generation nowadays.

毫无疑问，阿秒脉冲在阿秒科学中有着重要的应用。

首先来介绍单个阿秒脉冲的几个主要应用。

一是阿秒条纹光谱学 (attosecond streaking spectroscopy)，这是以单个 XUV 或软 X 射线脉冲为泵浦光，以红外 (infrared, IR) 飞秒激光为探测光的泵浦探测技术，既可以用来测量单个阿秒脉冲的脉宽 [224]，也可以用于探测电子的超快动力学。Krausz 小组首次产生单个阿秒脉冲不久后，他们就利用条纹光谱探究了氦原子中俄歇电子的超快动力学，并成功地直接在时域测量了氦原子 M 壳层的空穴寿命 [264]；另外，这种方法也被推广到了固体介质，如用于探究单晶钨中的不同能带的光电子出射时间的阿秒量级差异

[265]。

二是阿秒电子干涉测量法 (attosecond electron interferometry), 这是基于单个 XUV 阿秒脉冲的超大带宽特性的泵浦探测技术。Mauritsson 等人利用不同能量范围的 XUV 光子去分别激发或直接电离原子, 另有一束 IR 光去电离处于激发态的原子, 从而以自由电子波包为参照, 通过随时间演化的电子干涉谱图, 成功地探测了束缚电子波包 [266]。

三是实时探测解离过程中的电子局域化 (electron localization), 这是将阿秒泵浦探测技术从原子拓展到了分子体系。分子的解离通道和动力学过程依赖于泵浦阿秒脉冲和探测激光脉冲的参数, 以 H_2 分子为例, 一个电子被电离后, H_2^+ 分子会发生解离, 而剩下的那个电子会依附于其中某个氢核并随其一起运动, 该物理过程称为局域化, 而局域化的概率分布并不是两边对称的, 并且其不对称程度会随时间演化。单个 XUV 阿秒脉冲和 IR 光的组合就能探测甚至操控解离过程中的局域化不对称性 [39]。

单个阿秒脉冲的其它应用还包括离子电荷态计时镜 (ion-charge-state chronoscopy) [267]、阿秒光谱剪切干涉测量法 (attosecond spectral shear interferometry) [268]、阿秒瞬态吸收光谱 (attosecond transient absorption spectroscopy, 在第三章中还有更多介绍) 等等。

下面介绍阿秒脉冲链的应用。

首先, 与单个阿秒脉冲类似, 阿秒脉冲链也可用于干涉测量法。Remetter 等人利用 XUV 阿秒脉冲链和 IR 激光将氙原子电离, 通过电子波包的干涉, 成功测量了电子波包在动量空间的相位变化 [269]。第二, 阿秒脉冲链还可用作阿秒量子频闪观测仪 (attosecond quantum stroboscope), 用于捕捉阿秒量级的电子运动。Mauritsson 等人用阿秒脉冲链和 IR 激光与氙原子进行作用, 并且使阿秒脉冲链的相邻脉冲间隔恰为一个 IR 光场周期, 从而将自由电子在激光场作用下与离子核发生的超快相干再散射过程很好地呈现出来 [270]。第三, 阿秒脉冲链也可用于控制分子的解离。最近, Midorikawa 小组就用少脉冲的阿秒脉冲链 (few-pulse APT) 实现了对 H_2^+ 的解离通道控制 [271]。最后值得一提的是, 利用阿秒脉冲链还可以反过来影响和操控高次谐波的产生过程。Schafer 等人的单原子响应计算表明, 阿秒脉冲链和 IR 激光组合, 可以在高次谐波生成过程中挑选出单一的量子轨迹, 从而控制高次谐波的时频特性 [272]。不久后, 该小组的实验研究又表明, 和只用单个 IR 激光场与原子进行作用相比, 如果加上一个阿秒脉冲链, 即使光强很弱, 也能得到明显更高的高次谐波产额, 这一点在微观单原子层面和宏观介质层面都得到了验证 [273]。此外, 理论研究表明, 由于在 IR 光场上叠加阿秒脉冲链能精确控制电子波包进入连续态的时刻, 因此不仅能控制高次谐波, 还能控制阈上电离 [274]。

阿秒科学的研究纷繁复杂, 还有很多本章未详细介绍的内容, 如啁啾激光产生阿秒脉冲、阿秒脉冲的偏振性质、阿秒脉冲在宏观介质中的传播等等, 部分内容在后续章节中还将有所涉及, 在本章不做更多展开。

1.7 论文各章节内容概要

本论文各章节的主要内容概括如下：

本章为绪论，首先回顾了激光脉冲技术的发展历程，并对超强超短激光脉冲在各个科学技术领域的重要应用做了梳理。其次以原子为例，阐述了物质在激光作用下的各种不同电离机制。最后系统地介绍了一种典型的强场物理现象——高次谐波生成。

第二章是有关理论计算模型的内容，我们介绍了研究激光与物质相互作用的主要理论方法。

在第三章里，我们以氢原子和强激光场的相互作用为例，研究了原子库仑势对高次谐波辐射的影响，并关注了对阈下谐波和阈上谐波的不同作用。

在第四章里，我们采用二维准周期性结构模型，研究了固体材料在激光场中电离产生的光电子动量分布和高次谐波辐射谱。

在第五章里，我们研究了原子在少周期组合激光场中生成高次谐波的偏振状态，分别探讨了双色垂直偏振激光、双色圆偏振激光和三束激光叠加场这三种情形。

第六章是对全文的总结，并对未来的研究工作做出了展望。

第二章 激光与物质相互作用研究中的基本理论方法

2.1 理论方法概述

激光诞生后的几十年以来，超短超强激光脉冲与物质相互作用的研究不仅在实验上屡屡取得重大进展，也相应产生了诸多描述其动力学过程和内在机制的理论方法和物理模型。这些庞杂的理论模型体系主要可分成三类：纯经典理论模型、半经典理论模型和全量子理论模型。这三类模型体系从不同的视角看待物质微粒和与之相互作用的激光场，各有其特点，见图2-1表格所示。在强激光场与物质相互作用的研究领域中，半经典理论模型比纯经典理论模型更精确、更有效，同时又比全量子理论模型更直观、更便捷，因此本文第三章、第四章、第五章介绍的关于高次谐波生成的研究工作都是用半经典理论模型来开展的。

理论模型	原子分子	激光场	方程	特点
纯经典	经典粒子	经典电磁场	牛顿方程 麦克斯韦方程	粗略、定性 无量子效应
半经典	量子波包	经典电磁场	薛定谔方程 麦克斯韦方程	准确、定量 应用广泛
全量子	量子波包	光子集合	量子电动力学方程	最精确 计算量极大

图 2-1 三类理论模型对比。

Fig 2-1 Comparison of three classes of theoretical models.

半经典理论模型将经典性和量子性巧妙结合，在半经典模型的计算方法中，量子波包演化取代了经典粒子运动的概念，而波包具体如何演化则由含时薛定谔方程来决定。半经典理论模型发展至今，已经足以对大部分强场物理现象进行准确的定性解释和精确的定量描述，应该说已经相当成熟，并且在强场物理和超快物理领域都得到了最为广泛的应用。

具体到原子在强激光场中产生高次谐波的研究，属于半经典模型体系的常用理论方法包括：数值求解含时薛定谔方程方法、强场近似理论、Floquet 理论、含时密度泛函理论等，将在后文分别予以介绍。还有一些其它理论计算方法，如属于纯经典模型体系的经典轨迹蒙特卡罗方法 (classical trajectory Monte Carlo, CTMC) [132, 139, 275–277]，属于全量子模型体系的非微扰量子电动力学理论 (nonperturbative quantum electrodynamics,

NPQED) [278–282] 等等，本文则不再做过多展开介绍。

一般来说，对激光与物质作用生成高次谐波的描述可分为两部分，第一部分是单原子响应，即对单个原子在激光场中的响应行为进行精确描述，第二部分是宏观传播效应，即对单原子响应在整个宏观作用介质中的传播行为进行整体描述。在本章接下去的内容中，首先将阐述前文提及的几种研究单原子响应的半经典模型理论方法，对其中的数值求解含时薛定谔方程方法进行详细介绍，对强场近似理论等其它几种方法做简要介绍，最后简单介绍一下关于宏观传播效应的研究。

2.2 数值求解含时薛定谔方程

本节将系统阐述数值求解含时薛定谔方程的方法，首先给出薛定谔方程的介绍以及描述激光与物质相互作用的含时薛定谔方程形式的推导，再介绍几种具体的直接数值求解的算法，然后讨论其它一些重要的计算处理细节，如初态波函数的获取、边界的处理、库仑势的选取，最后介绍如何利用含时薛定谔方程的解来进行高次谐波辐射谱的计算。

2.2.1 薛定谔方程概述

薛定谔方程是由 E. Schrödinger 于上世纪 20 年代提出的量子力学波动方程 [283]，是精确描述微观粒子运动状态的重要基本定律。

薛定谔方程最早用于描述氢原子中的束缚态电子波函数，讨论的是没有外加电场的情形，因此波函数不随着时间演化，这种简化条件下的薛定谔方程也被称为定态薛定谔方程 (Stationary Schrödinger Equation)，见 (2-1) 式。

$$\hat{H}_0\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}), \quad (2-1)$$

其中， $\Psi(\mathbf{r})$ 为电子波函数，表征其随空间坐标 \mathbf{r} 的几率分布， E 是能量。 \hat{H}_0 表示无外场情况下的哈密顿算符，

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V_0(\mathbf{r}) = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V_0(\mathbf{r}), \quad (2-2)$$

其中 $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ 为动量算符（为表达简洁，下文中都将直接简写为 \mathbf{p} ，并不再特别指明其算符意义）， $V_0(\mathbf{r})$ 为势能项， m 是电子质量。在原子单位制下，定态薛定谔方程可写为

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V_0(\mathbf{r})\right]\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}). \quad (2-3)$$

由定态薛定谔方程可以推导出原子的分立能级等一系列原子的定态性质，可描述没有外场作用下的电子运动状态。

而在如今的强场物理和超快物理领域，我们研究的都是激光场与原子的动态相互作用，激光脉冲作为外加电场，其强度是瞬时变化的，原子中的电子波函数也不再是定态，而是随着时间不断演化，因此需要描述包含时间维度信息的方程，也就是含时薛定谔方程 (Time-Dependent Schrödinger Equation, TDSE)。含时薛定谔方程包含了波函数随时间演化的信息，可表达为 (2-4) 式。

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad (2-4)$$

其中 \hat{H} 表示有外场情况下的哈密顿算符

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V_0(\mathbf{r}) + V_I(\mathbf{r}, t), \quad (2-5)$$

其中， \hat{H}_I 表示原子与外场作用的哈密顿算符，具体体现为原子与瞬变激光电场的动态相互作用而引入的势能项 $V_I(\mathbf{r}, t)$ ， $V_I(\mathbf{r}, t)$ 的具体形式将在后文给出更多讨论。将上式中的势能项合并，令

$$V(\mathbf{r}, t) = V_0(\mathbf{r}) + V_I(\mathbf{r}, t), \quad (2-6)$$

用 $V(\mathbf{r}, t)$ 来表示有外场情况下的总势能项。

结合 (2-4) 式至 (2-6) 式，则含时薛定谔方程可写为

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(\mathbf{r}, t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \quad (2-7)$$

在原子单位制下，可简化为

$$\left[-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\mathbf{r}, t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \quad (2-8)$$

接下来，我们对 (2-5) 式中的原子与激光场相互作用势能项 $V_I(\mathbf{r}, t)$ 的具体形式进行更多说明和相关推导。 $V_I(\mathbf{r}, t)$ 有两种形式，分别是速度规范 (velocity gauge) 形式和长度规范 (length gauge) 形式。

我们先对速度规范形式进行推导，而后由速度规范引出长度规范形式。在有激光场的情况下，哈密顿量算符可写为

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \left[\mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{c} \right]^2 + V_0(\mathbf{r}), \quad (2-9)$$

其中 $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ 为激光场矢势, \mathbf{p} 表示正则动量, 而 $\mathbf{p} + \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)/c$ 为相应的机械动量, c 为真空光速。下面, 我们对 (2-9) 式中的 $[\mathbf{p} + \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)/c]^2$ 项进行化简。为简明起见, 暂且将 $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ 写为 \mathbf{A} 。

$$\left[\mathbf{p} + \frac{\mathbf{A}}{c}\right]^2 = \mathbf{p}^2 + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}}{c} + \frac{\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}}{c} + \frac{\mathbf{A}^2}{c^2}. \quad (2-10)$$

通常情况下, \mathbf{p} 与 \mathbf{A} 并不对易, 考虑 $\mathbf{p} = -i\nabla$, 可得

$$\begin{aligned} [\mathbf{p}, \mathbf{A}]\psi &= \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}\psi - \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}\psi \\ &= -i\nabla \cdot (\mathbf{A}\psi) + i\mathbf{A} \cdot \nabla\psi \\ &= -i[(\nabla \cdot \mathbf{A})\psi + \mathbf{A} \cdot \nabla\psi] + i\mathbf{A} \cdot \nabla\psi \\ &= -i(\nabla \cdot \mathbf{A})\psi. \end{aligned} \quad (2-11)$$

由此可知

$$[\mathbf{p}, \mathbf{A}] = -i(\nabla \cdot \mathbf{A}) = \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}. \quad (2-12)$$

如果采用库仑规范, 即令 $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$, 则 \mathbf{p} 与 \mathbf{A} 对易, 有 $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} = \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ 。这样, 方程 (2-9) 可以写成

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \left[\mathbf{p}^2 + \frac{2\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}}{c} + \frac{\mathbf{A}^2}{c^2} \right] + V_0(\mathbf{r}). \quad (2-13)$$

若将激光场看成中心频率为 ω_0 的单色平面波, 则矢势 $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ 可描述为

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = A_0(e^{-i\omega_0 t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + c. c.), \quad (2-14)$$

其中 \mathbf{k} 为波矢, $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda_0$, λ_0 为中心波长。对于强场激光电离生成高次谐波的研究来说, 电子运动的空间位置 \mathbf{r} 范围一般在几个 \AA , 而激光的波长则一般在几千乃至上万 \AA , 因此 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \ll 1$, 从而

$$e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} = 1 + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \frac{1}{2}(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})^2 + \dots \simeq 1. \quad (2-15)$$

以上这种近似称为偶极近似 (dipole approximation), 即认为激光场的空间分布在所研究体系的尺度范围内是完全均匀的, 在研究中只考虑激光场随时间的变化

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \simeq \mathbf{A}(t). \quad (2-16)$$

在偶极近似下, 体系哈密顿量可写为

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \left[\mathbf{p}^2 + \frac{2\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}}{c} + \frac{\mathbf{A}^2(t)}{c^2} \right] + V_0(\mathbf{r}). \quad (2-17)$$

上式中的 $\mathbf{A}^2(t)/c^2$ 项一般都可以忽略，这是因为该项与空间位置无关，相当于对空间波函数的每一个点都乘上一个相同的相位因子，因此不影响对物理过程的解读。略去该项后，含时薛定谔方程可写为

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2} + \frac{\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}}{c} + V_0(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \quad (2-18)$$

由 $\hat{H}_0 = \frac{\mathbf{p}^2}{2} + V_0(\mathbf{r})$ ，上式可改写为

$$\left[\hat{H}_0 + \frac{\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}}{c} \right] \Psi(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \quad (2-19)$$

对比方程 (2-19) 和方程 (2-5)，可以看出激光与原子作用的动态势能项 $V_I(\mathbf{r}, t)$ 即为

$$V_I(\mathbf{r}, t) = \frac{\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{p}}{c} = \frac{\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p}}{c}. \quad (2-20)$$

如方程 (2-20) 所示的这种激光原子相互作用项形式就称为速度规范形式。

对方程 (2-19) 引入一个么正变换，并使用原子单位制，即令

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \Psi_l(\mathbf{r}, t) \exp \left[\frac{ie}{c\hbar} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right] = \Psi_l(\mathbf{r}, t) \exp \left[-\frac{i}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right], \quad (2-21)$$

则可以得到

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[\frac{\partial}{\partial t} \Psi_l(\mathbf{r}, t) - \frac{i}{c} \mathbf{r} \frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t} \cdot \Psi_l(\mathbf{r}, t) \right] \exp \left[-\frac{i}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right], \quad (2-22)$$

$$\nabla \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[\nabla \Psi_l(\mathbf{r}, t) - \frac{i}{c} \mathbf{A}(t) \Psi_l(\mathbf{r}, t) \right] \exp \left[-\frac{i}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right], \quad (2-23)$$

$$\nabla^2 \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[\nabla^2 \Psi_l(\mathbf{r}, t) - \frac{2i}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \nabla \Psi_l(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \mathbf{A}^2(t) \Psi_l(\mathbf{r}, t) \right] \exp \left[-\frac{i}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right]. \quad (2-24)$$

利用 (2-22) 式-(2-24) 式，并且同样略去 $\mathbf{A}^2(t)$ 项，则方程 (2-19) 可改写为

$$[\hat{H}_0 + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)] \Psi(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad (2-25)$$

这里我们略去了波函数中的下标 l ，式中 $\mathbf{E}(t)$ 为激光电场，与矢势 $\mathbf{A}(t)$ 之间满足关系

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t}. \quad (2-26)$$

由方程 (2-25) 可以看出激光与原子作用的势能项 $V_I(\mathbf{r}, t)$ 为

$$V_I(\mathbf{r}, t) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (2-27)$$

如方程 (2-27) 所示的这种激光原子相互作用项形式就称为长度规范形式。

以上介绍了 TDSE, 下面来讨论它的求解。最早的 TDSE 用来描述氢原子, 由于只有一个电子, 因此可以对 TDSE 进行解析求解。虽然解析方法得到的结果简洁明了, 便于把握物理规律, 但仅对氢原子或某些特定原子在特定条件下才适用, 因此解析法的应用范围有较大的限制。实际物理问题往往都会涉及到多个电子的原子, 不做任何近似的解析求解就变得几乎不可能。随着现代计算机技术的突飞猛进, 物理学家们越来越多地利用计算机的超级计算性能来对 TDSE 进行数值求解。数值模拟计算方法既直观, 又确保了相当高的准确性, 因此得到了迅速发展。然而, 对于多粒子体系, 精确数值模拟的计算量过于庞大, 因此也需要做一些合理的近似, 才能将计算量控制在合适范围内。

Kulander 和 Krause 等人提出的单电子近似模型可以很好地应用于很多情况下的多电子体系问题, 该模型认为原子中只有一个电子是可以成为自由电子的, 其余电子都不受激光电场的影响。具体到高次谐波, 这个自由电子受到库仑势和激光场的共同作用, 产生感生电偶极矩, 其加速振荡便产生了高次谐波辐射。基于单电子近似的 TDSE 数值求解是本文研究所使用的最主要的计算方法, 在下面的章节中就将予以详细的介绍。

直接数值求解 TDSE 一般有两类方法: 第一类是本征态展开法, 第二类是空间离散化法。

所谓本征态展开法, 就是先求出没有外加激光场时体系各个能级的本征态波函数, 然后将体系在任意时刻的波函数用这些本征态展开, 得到由各个本征态展开系数所构成的一阶微分方程组, 最后通过求解这些方程得到各个态的系数如何随时间演化, 从而获知体系在任意时刻的量子状态。这种方法虽然思路简洁, 但在物理图象上不是太直观。另外值得注意的是, 如果激光场很强, 那么体系的束缚态本征能级会发生移动 (AC Stark shift) [284, 285], 需要引入一定的修正。

所谓空间离散化法, 就是直接把体系的波函数在空间进行网格离散化, 在给定范围的网格空间里, 将波函数进行时间维度的传播演化, 从而求得体系在每个时间点的波函数。这种方法直接模拟了波函数在实际物理空间的分布, 物理图象很直观, 包含的物理信息全面, 且不受具体激光参数影响, 普适性强。空间离散化的常用数值方法有 Crank-Nicholson 方法和劈裂算符方法, 下面将以最简单的一维情况为例, 对两种方法分别予以详细介绍。

2.2.2 Crank-Nicholson 方法

Crank-Nicholson 方法 [286] 的核心是将包含求偏导数的波动方程 TDSE 转化为差分矩阵方程来进行求解。在一维情况下, 我们将方程 (2-4) 改写为

$$H\Psi(x, t) = i \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t}. \quad (2-28)$$

由于下面的推导主要是阐述波函数 $\Psi(x, t)$ 如何随时间演化, 因此这里我们暂时不考虑哈密顿量的算符意义 (即空间求偏导数计算), 仅考察对时间的求导计算。将对 t 的偏导数暂时记为全导数, 并做简单的处理, 上式可改写为

$$\frac{d\Psi(x, t)}{\Psi(x, t)} = -iHdt. \quad (2-29)$$

对此式两边进行积分计算, 易得

$$\Psi(x, t) = e^{-iHt}. \quad (2-30)$$

同理有

$$\Psi(x, t + \Delta t) = e^{-iH(t+\Delta t)}. \quad (2-31)$$

由 (2-30) 式和 (2-31) 式可得

$$\Psi(x, t + \Delta t) = e^{-iHt}\Psi(x, t). \quad (2-32)$$

对方程 (2-32) 两边同乘以 $e^{iH\Delta t/2}$, 得到

$$e^{iH\Delta t/2}\Psi(x, t + \Delta t) = e^{-iH\Delta t/2}\Psi(x, t). \quad (2-33)$$

利用 Δt 为小量进行 Taylor 展开, 有

$$e^{iH\Delta t/2} = 1 + iH\Delta t/2 - \frac{1}{2}(H\Delta t/2)^2 + \dots \simeq 1 + iH\Delta t/2, \quad (2-34)$$

由此得到

$$(1 + iH\Delta t/2)\Psi(x, t + \Delta t) = (1 - iH\Delta t/2)\Psi(x, t). \quad (2-35)$$

接下来, 我们恢复 H 的算符意义, 在一维模型中,

$$H = S \frac{\partial^2}{\partial x^2} + F \frac{\partial}{\partial x} + Z, \quad (2-36)$$

其中, S 、 F 、 Z 分别表示 TDSE 中的二阶导数项、一阶导数项和零阶导数项的系数。根据前文的介绍, 易知在速度规范下的一维 TDSE 可写为

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - i\mathbf{A}(t) \frac{\partial}{\partial x} + V(x) \right] \Psi(x, t) = i \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t}. \quad (2-37)$$

这里需要注意的是，在实际数值计算中，由于光速 c 是一个常数并且会在数学运算中被抵消，因此往往不再出现。在长度规范下的一维 TDSE 可写为

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + x\mathbf{E}(t) + V(x) \right] \Psi(x, t) = i \frac{\partial \Psi(x, t)}{\partial t}. \quad (2-38)$$

在 (2-37) 式和 (2-38) 式中， $V(x)$ 代表原子核库仑势，这里，我们采用的库仑势形式为软核库仑势，其基本形式为

$$V(x) = -\frac{1}{\sqrt{x^2 + a}}. \quad (2-39)$$

式中的 a 是一个可调参数，其作用有两个：一是可以避免纯库仑势导致的奇点，二是可以通过设置合适的 a 值，使得模型原子与真实原子的基态能量相等。事实上，软核库仑势并非理论计算中唯一的原子核模型势，关于软核势以及更多其它形式的模型势的介绍可参见 2.2.6 小节。

综上，在速度规范下，各阶导数项的系数分别为

$$\begin{cases} S = -\frac{1}{2}, \\ F = -i\mathbf{A}(t), \\ Z = -\frac{1}{\sqrt{x^2 + a}}. \end{cases} \quad (2-40)$$

在长度规范下，各阶导数项的系数分别为

$$\begin{cases} S = -\frac{1}{2}, \\ F = 0, \\ Z = x\mathbf{E}(t) - \frac{1}{\sqrt{x^2 + a}}. \end{cases} \quad (2-41)$$

下面，我们将方程 (2-35) 转化为差分方程。假设在计算的空间网格中总共有 M 个格点，则对第 m 个空间格点而言 (其中 $2 \leq m \leq M-1$)，空间二阶导数和一阶导数分别可以差分化为

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \rightarrow \frac{\Psi(x_{m+1}) - 2\Psi(x_m) + \Psi(x_{m-1}))}{(\Delta x)^2}, \quad (2-42)$$

$$\frac{\partial}{\partial x} \rightarrow \frac{\Psi(x_{m+1}) - \Psi(x_{m-1}))}{2\Delta x}. \quad (2-43)$$

由此可以得到，差分的 TDSE 为

$$\begin{aligned}
& \Psi(x_m, t + \Delta t) + i \frac{\Delta t}{2} \left[S_m \frac{\Psi(x_{m+1}, t + \Delta t) - 2\Psi(x_m, t + \Delta t) + \Psi(x_{m-1}, t + \Delta t)}{(\Delta x)^2} \right. \\
& \quad \left. + F_m \frac{\Psi(x_{m+1}, t + \Delta t) - \Psi(x_{m-1}, t + \Delta t)}{2\Delta x} + Z_m \Psi(x_m, t + \Delta t) \right] \\
= & \Psi(x_m, t) - i \frac{\Delta t}{2} \left[S_m \frac{\Psi(x_{m+1}, t) - 2\Psi(x_m, t) + \Psi(x_{m-1}, t)}{(\Delta x)^2} + F_m \frac{\Psi(x_{m+1}, t) - \Psi(x_{m-1}, t)}{2\Delta x} \right. \\
& \quad \left. + Z_m \Psi(x_m, t) \right], \quad (2-44)
\end{aligned}$$

其中， Δx 表示空间格点的步长， Δt 表示时间步长，系数 S 、 F 和 Z 的下标 m 表示第 m 个格点。对于 $m = 1$ 和 $m = M$ 的情况，可以根据实际计算情况做相应的边界处理，常见的处理方法是置零。

综合考虑整个空间的所有格点，即可由 (2-44) 式得到矩阵方程

$$\begin{aligned}
& \begin{pmatrix} A_{2,1} & A_{3,1} & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ A_{1,2} & A_{2,2} & A_{3,2} & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A_{1,3} & A_{2,3} & A_{3,3} & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots & A_{1,M-1} & A_{2,M-1} & A_{3,M-1} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & A_{1,M} & A_{2,M} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi(x_1, t + \Delta t) \\ \Psi(x_2, t + \Delta t) \\ \Psi(x_3, t + \Delta t) \\ \vdots \\ \Psi(x_{M-1}, t + \Delta t) \\ \Psi(x_M, t + \Delta t) \end{pmatrix} \\
= & \begin{pmatrix} B_{2,1} & B_{3,1} & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ B_{1,2} & B_{2,2} & B_{3,2} & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & B_{1,3} & B_{2,3} & B_{3,3} & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots & B_{1,M-1} & B_{2,M-1} & B_{3,M-1} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & B_{1,M} & B_{2,M} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi(x_1, t) \\ \Psi(x_2, t) \\ \Psi(x_3, t) \\ \vdots \\ \Psi(x_{M-1}, t) \\ \Psi(x_M, t) \end{pmatrix}, \quad (2-45)
\end{aligned}$$

其中，各矩阵元 A , B 分别可以写成

$$A_{1,m} = \frac{i\Delta t}{2(\Delta x)^2} S_m - \frac{i\Delta t}{4\Delta x} F_m, \quad (2-46)$$

$$A_{2,m} = 1 - \frac{i\Delta t}{(\Delta x)^2} S_m + \frac{i\Delta t}{2} Z_m, \quad (2-47)$$

$$A_{3,m} = \frac{i\Delta t}{2(\Delta x)^2} S_m + \frac{i\Delta t}{4\Delta x} F_m, \quad (2-48)$$

$$B_{1,m} = -\frac{i\Delta t}{2(\Delta x)^2} S_m + \frac{i\Delta t}{4\Delta x} F_m, \quad (2-49)$$

$$B_{2,m} = 1 + \frac{i\Delta t}{(\Delta x)^2} S_m - \frac{i\Delta t}{2} Z_m, \quad (2-50)$$

$$B_{3,m} = -\frac{i\Delta t}{2(\Delta x)^2} S_m - \frac{i\Delta t}{4\Delta x} F_m. \quad (2-51)$$

方程 (2-45) 可以用高斯消元法来求解，考虑到其系数矩阵是三对角矩阵，可以将其分解为上三角矩阵和下三角矩阵的乘积，将零元素都排除在计算之外，这种方法也称为追赶法，是高斯消元法的特例，而计算效率更高。大量的数值计算经验已经表明，Crank-Nicholson 方法是无条件收敛的。此外，这个方法的另一个优势在于它能够比较方便地从一维模型推广到二维模型乃至更高维的模型。

以二维模型下的 TDSE 为例，对于二维空间波函数 $\Psi(x, y, t)$ ，参照方程 (2-32)，我们可以写出

$$\Psi(x, y, t + \Delta t) = e^{-i(H_x + H_y)\Delta t} \Psi(x, y, t) \approx e^{-iH_x \Delta t} e^{-iH_y \Delta t} \Psi(x, y, t), \quad (2-52)$$

其中 H_x 和 H_y 分别代表哈密顿量在 x 和 y 两个方向的分量。参照一维的情形的推导，容易得到

$$\Psi(x, y, t + \Delta t) \approx \frac{1 - iH_x \Delta t/2}{1 + iH_x \Delta t/2} \frac{1 - iH_y \Delta t/2}{1 + iH_y \Delta t/2} \Psi(x, y, t). \quad (2-53)$$

值得注意的是，以上两式中使用了约等号，这是因为 H_x 和 H_y 作为算符，并不对易，即 $[H_x, H_y] \neq 0$ 。一般地，对于算符 \hat{A}_1 和 \hat{A}_2 ，其 e 指数运算满足关系

$$\exp(\hat{A}_1 \Delta t) \exp(\hat{A}_2 \Delta t) = \exp \left[(\hat{A}_1 + \hat{A}_2) \Delta t + \frac{1}{2} [\hat{A}_1, \hat{A}_2] (\Delta t)^2 + O((\Delta t)^3) \right]. \quad (2-54)$$

不难发现，若 $[\hat{A}_1, \hat{A}_2] \neq 0$ ，则存在 $(\Delta t)^2$ 量级的小量偏移。而如果加入第三个算符 \hat{A}_3 ，则有

$$\begin{aligned} \exp(\hat{A}_1\Delta t)\exp(\hat{A}_2\Delta t)\exp(\hat{A}_3\Delta t) &= \exp\left[(\hat{A}_1 + \hat{A}_2 + \hat{A}_3)\Delta t + \right. \\ &\quad \left. \frac{1}{2}\left([\hat{A}_1, \hat{A}_2] + [\hat{A}_1, \hat{A}_3] + [\hat{A}_2, \hat{A}_3]\right)(\Delta t)^2 \right. \\ &\quad \left. + O((\Delta t)^3)\right]. \end{aligned} \quad (2-55)$$

从上式可以看出, 若取 $\hat{A}_1 = \hat{A}_3$, 则 $(\Delta t)^2$ 项会被抵消。因此, 为了进一步提高计算精度, 我们往往将 H_x 或 H_y 中的一项拆分成相等的两半。例如, 将方程 (2-52) 改写为

$$\Psi(x, y, t + \Delta t) = e^{-i(H_y/2 + H_x + H_y/2)\Delta t}\Psi(x, y, t) \approx e^{-iH_y\Delta t/2}e^{-iH_x\Delta t}e^{-iH_y\Delta t/2}\Psi(x, y, t), \quad (2-56)$$

从而得到

$$\Psi(x, y, t + \Delta t) \approx \frac{1 - iH_y\Delta t/4}{1 + iH_y\Delta t/4} \frac{1 - iH_x\Delta t/2}{1 + iH_x\Delta t/2} \frac{1 - iH_y\Delta t/4}{1 + iH_y\Delta t/4} \Psi(x, y, t). \quad (2-57)$$

通过以上分析可知, 方程 (2-57) 比方程 (2-53) 具有更高的计算精度。类比一维情形, 用 Crank-Nicholson 方法对 x 和 y 两个方向分别进行 H_x 和 H_y 的差分, 得到相应的三对角矩阵方程, 再用追赶法求解, 即可完成对波函数 $\Psi(x, y, t)$ 的时间演化模拟。对更高维的情况, 也可参照此法进行计算。在二维模型中使用 Crank-Nicholson 方法数值求解 TDSE 的 C++ 源代码可见附录。

2.2.3 劈裂算符方法

劈裂算符 (Split Operator) 方法是另一种常用的直接数值求解 TDSE 的方法, 它的计算关键之处是将波函数在位置空间和动量空间之间进行来回转换, 从而简化计算。下面仍以一维模型为例进行原理介绍。

按照上一小节的介绍, 哈密顿量算符 $\hat{H} = \hat{T} + \hat{V}$ 可以拆分为

$$\hat{H} = \hat{T}/2 + \hat{V} + \hat{T}/2, \quad (2-58)$$

其中 \hat{T} 和 \hat{V} 分别表示动能算符和势能算符, 由于两者不对易, 这样拆分可以提高计算精度。由上式可以得到,

$$\Psi(x, t + \Delta t) = e^{-i\hat{T}\Delta t/2}e^{-i\hat{V}\Delta t}e^{-i\hat{T}\Delta t/2}\Psi(x, t). \quad (2-59)$$

结合劈裂算符方法的特点, 我们将动能算符在速度规范和长度规范下分别表示成

$$\hat{T} = \frac{1}{2}[\hat{p}_x + A(t)]^2, \quad (2-60)$$

$$\hat{T} = \frac{1}{2}\hat{p}_x^2. \quad (2-61)$$

其中的 p_x 为正则动量，而非机械动量。在位置空间中，无论是哪种规范，都会包含动量算符 $\hat{p}_x = -i\partial/\partial x$ 的求偏导数运算，操作较为麻烦，而如果转化到动量空间，那么动量算符将简化为直接的乘法运算 $\hat{p}_x = p_x$ 。类似地，在动量空间中，位置算符 $\hat{x} = i\partial/\partial p_x$ 又将包含求偏导数运算，因此只需再变换回到位置空间即可简化为直接的乘法运算 $\hat{x} = x$ 。从以上分析易知，只需要将波函数在这两个空间中来回转换，即可有效简化运算，劈裂算符方法正是基于这一思想而设计的算法，其中，位置空间和动量空间的转换可以通过傅里叶变换和反傅里叶变换来实现。

综上所述，以速度规范为例，劈裂算符方法的计算步骤可以总结如下：

1. 将波函数 $\Psi(x, t)$ 变换到动量空间，得到 $\tilde{\Psi}_1(p_x, t)$

$$\tilde{\Psi}_1(p_x, t) = \mathfrak{F}[\Psi(x, t)], \quad (2-62)$$

其中 \mathfrak{F} 表示傅里叶变换运算。

2. 将第一部分的动能算符作用到 $\tilde{\Psi}_1(p_x, t)$ 上去，得到 $\tilde{\Psi}_2(p_x, t)$

$$\tilde{\Psi}_2(p_x, t) = e^{-i\frac{[\hat{p}_x + A(t)]^2}{2} \frac{\Delta t}{2}} \tilde{\Psi}_1(p_x, t) = e^{-i\frac{[p_x + A(t)]^2}{2} \frac{\Delta t}{2}} \tilde{\Psi}_1(p_x, t). \quad (2-63)$$

3. 将 $\tilde{\Psi}_2(p_x, t)$ 变换回位置空间得到 $\Psi_3(x, t)$

$$\Psi_3(x, t) = \mathfrak{F}^{-1}[\tilde{\Psi}_2(p_x, t)], \quad (2-64)$$

其中 \mathfrak{F}^{-1} 表示反傅里叶变换运算。

4. 将势能算符作用到 $\Psi_3(x, t)$ 上去，得到 $\Psi_4(x, t)$

$$\Psi_4(x, t) = e^{-i\hat{V}\Delta t} \Psi_3(x, t) = e^{-iV\Delta t} \Psi_3(x, t). \quad (2-65)$$

5. 将 $\Psi_4(x, t)$ 变换到动量空间得到 $\tilde{\Psi}_4(p_x, t)$ ，并将第二部分的动能算符作用上去，得到 $\tilde{\Psi}_5(p_x, t)$ （即重复刚才的第 1 步和第 2 步）。

6. 将 $\tilde{\Psi}_5(p_x, t)$ 变换回到位置空间，得到 $\Psi(x, t + \Delta t)$

$$\Psi(x, t + \Delta t) = \mathfrak{F}^{-1}[\tilde{\Psi}_5(p_x, t)]. \quad (2-66)$$

通过以上的 6 个步骤，就完成了—一个时间步长 Δt 的演化，反复进行，即可得到波函数的时间演化全过程。

2.2.4 初态波函数的计算方法

在 2.2.2 和 2.2.3 小节里，我们分别介绍了 Crank-Nicholson 方法和劈裂算符方法的原理和计算步骤。两种方法各有优势，劈裂算符方法的程序实现较为简单，并且在大量的

计算测试中都表现出更高的精度，另外也便于收集光电子动量谱等信息。但是，劈裂算法只适用于直角坐标系，无法推广到柱坐标系和球坐标系，也无法用于非偶极近似的激光场条件。Crank-Nicholson 方法虽然计算相对较为复杂，但也更为基础和系统化，因此具有很强的普适性，几乎适用于任何坐标系和外场条件。不管是用哪种方法进行波函数的演化，都需要有一个初始波函数作为计算的起点。考虑真实物理情况，原子或其它体系在没有外场作用之前都是处于基态，因此我们往往都将体系的基态作为初始波函数。对于极少数体系，如氢原子，其基态波函数有明确的解析函数表达式，但对于大多数体系来说则并没有解析表达式，因此只能通过数值计算来得到。本节就将介绍数值计算体系本征态尤其是基态波函数的方法。

在本文的研究工作中，采用的方法是虚时间演化法 (imaginary time evolution)，因此首先将对这种方法进行详细介绍，之后再对其它几种常见方法作简要介绍。

虚时间演化法的内涵是将原本属于实数域的时间变量 t 转化到虚数域，从而获得体系能量最低的本征态，原理如下所述。在实时间情况下，在没有外场时，对于体系的任意波函数而言有

$$\Psi(t + \Delta t) = e^{-i\hat{H}_0\Delta t}\Psi(t) = \sum_{n=0} e^{-iE_n\Delta t}\varphi_n(t). \quad (2-67)$$

式中的 φ_n 和 E_n 分别表示体系的本征态波函数及其本征能量，且满足

$$E_1 < E_2 < \dots < E_n < \dots < 0, \quad (2-68)$$

其中 E_1 表示基态能量， E_2 表示第一激发态能量，以此类推。

现在构造一个虚数时间 $\xi = it$ ，则上式可改写为

$$\Psi(\xi + \Delta\xi) = e^{-\hat{H}_0\Delta\xi}\Psi(\xi) = \sum_{n=0} e^{-E_n\Delta\xi}\varphi_n(\xi). \quad (2-69)$$

可以看出，每经过一步演化，每个本征态 φ_n 都各自乘上了一个系数 $e^{-E_n\Delta\xi}$ ，而由 (2-68) 式易知，基态的系数 $e^{-E_1\Delta\xi}$ 是最大的，因此对于任一猜测的初始波函数，随着时间的一步演化，基态波函数在整个波函数中的占比越来越大，而能量较高的其它激发态则占比越来越小，因此只要经过足够多的演化步数，最终就能得到我们所需要的基态波函数 φ_1 ，并得到基态能量 $E_1 = \langle \varphi_1 | \hat{H}_0 | \varphi_1 \rangle$ 。这里有两个关键点值得注意。第一，由于 $e^{-E_n\Delta\xi}$ 不再是模为 1 的因子，因此在虚时间演化过程中，体系的波函数总几率不再维持为 1，要使波函数总几率恒为 1，必须在每个时间步长的演化后，对波函数重新进行归一化处理。第二，虽然初始波函数可以任意猜测，但最好不要是完全空间对称或反对称的函数，因为这样的波函数可能就没有那些空间对称或反对称的本征态波函数成分，也就无法通过虚时间演化将该成分的占比放大，因此对于某些特定的问题，这样的初始波函数可能就无法得到我们所想要的那个态。

由于虚时间演化法的本质是得到能量最低的态，因此不仅可以得到基态波函数，也可以得到激发态波函数。操作方法如下：首先通过上文介绍的方法计算得到基态波函数 φ_1 ，然后在每一步的演化中先将已知的基态剔除掉，即令

$$|\Psi(\xi)\rangle \rightarrow |\Psi(\xi)\rangle - |\varphi_1\rangle\langle\varphi_1|\Psi(\xi)\rangle. \quad (2-70)$$

剔除后再进行下一步虚时间演化，反复进行剔除和演化，最后就能得到第一激发态的波函数。若想得到第二激发态，只需要在每一步演化中先剔除基态和第一激发态即可，其它的更高激发态亦可以此类推。

以上介绍了虚时间演化法，但这并不是唯一的计算体系基态或其它本征态波函数的方法，其它的常见方法还包括哈密顿量对角化 (Hamiltonian diagonalization)、关联函数法 (correlation function method)、打靶法 (shooting method) 等等，下面分别作一下简单的介绍。所谓哈密顿量对角化，就是将体系的无外场哈密顿量算符 \hat{H}_0 进行差分化并写成矩阵形式，由2.2.2小节的阐述可知该矩阵是一个三对角矩阵，通过对该矩阵进行对角化计算，即可得到一系列特征值和特征向量，这就是本征态能量 E_n 及其对应的本征态波函数 φ_n 。哈密顿量对角化方法可以直接得到一系列的本征态，操作简单，并且对波函数尤其是激发态波函数的计算精度也比虚时间演化法更高，但是对于空间网格点数较多的情形，哈密顿量矩阵的元素量庞大，对角化计算将非常耗时，因此在网格点较多时，如果只需要得到能量最低的前几个本征态，还是虚时间演化法最合适。

所谓关联函数法，是构造一个随时间演化的关联函数，并将这个时域函数转化到频域，得到一系列本征态能级的分布情况。下面以一维模型为例简单介绍。首先给定一个随机猜测的初始波函数 $\Psi(x, t=0)$ ，然后让其在无外场的哈密顿量 \hat{H}_0 作用下进行自由演化（演化计算可用 Crank-Nicholson 方法或劈裂算符方法等），在每一个时刻 t 都得到一个 $\Psi(x, t)$ ，并计算 t 时刻的关联函数 $\mathcal{C}(t)$ ：

$$\mathcal{C}(t) = \langle\Psi(x, t=0)|\Psi(x, t)\rangle. \quad (2-71)$$

体系的波函数 $\Psi(x, t)$ 可以写为

$$\Psi(x, t) = \sum_{n=0} a_n \varphi_n(x) e^{-iE_n t}, \quad (2-72)$$

其中 a_n 为本征态 φ_n 的占比系数。因此关联函数可表示为

$$\mathcal{C}(t) = \sum_{n=0} |a_n|^2 e^{-iE_n t}. \quad (2-73)$$

这里运用了各个本征态之间的正交归一性质 $\langle\varphi_m|\varphi_n\rangle = \delta(m-n)$ 。得到 $\mathcal{C}(t)$ 后，对其做傅里叶变换，可得

$$\mathcal{C}(E) = \mathfrak{F}[\mathcal{C}(t)] = \sum_{n=0} |a_n|^2 \delta(E - E_n). \quad (2-74)$$

从上式可以看出,从关联函数得到的频谱是一系列的尖锐峰,每个峰对应的能量位置就是体系本征态的能量。关联函数法思想简明,程序实现方便,在只需要求得本征能量而不需要计算本征态波函数的情况下,这个方法无疑是很好的选择。需要注意的是,为了使频谱的分辨率足够高,需要取一个足够大的总演化时间 t (足够多的演化步数),而为了使频谱的范围足够大,则需要取一个足够小的时间步长 Δt 。

所谓打靶法,是一种求解常微分方程边值问题的常用数值解法。简单地说,打靶法解决的是一个已知边界值而求初值的问题,其思路是适当选择和调整初值条件,并在该条件下求解一系列初值问题,最后使之逼近给定的边界条件。若将描述粒子运动的轨迹视作弹道,那么求解过程就如同不断调整试射条件使子弹打到预定的靶子。对于求解体系的本征态而言,打靶法只能求解径向波函数 $P(r)$,基本方法是设定某一边界位置 r_b ,从 $r = 0$ 处利用初值向外进行递推得到 $P(r_b)_{ex}$,从 $r = \infty$ 处利用初值向内进行递推得到 $P(r_b)_{in}$,递推过程是求解一系列常微分方程,当猜测的初值可以使 $P(r_b)_{ex} = P(r_b)_{in}$ 时,即认为得到了正确的初值,并由此计算得到本征态波函数和能量。打靶法虽然只能求解径向波函数,但计算速度较快,因此也是一种常见的方法。

本小节介绍了几种数值计算体系基态和其它本征态波函数及本征能量的方法,在实际的计算中,需要根据所求对象,对计算的精度要求和耗时要求等因素来选择最合适的计算方法。

2.2.5 边界的处理

所有的数值计算都面临的一个问题就是边界问题,因为计算的空间网格必然是限定在一个有限范围内的,当原子或其它体系在激光作用下发生电离后,电子波函数在向外传播的过程中就可能达到网格的边界处并反射回来。由于这种反射在真实物理环境中并不存在,属于非物理的伪信号,所以在数值计算中,我们往往需要对边界附近区域进行处理,来消除或减弱这种边界反射。一般来说,对边界的处理有三种方法,即衰减边界、透明边界和相干边界。在本文的研究计算中,使用的都是衰减边界,因此下面以一维模型为例对这种方法进行阐述。

衰减边界的含义就是在波函数在传播到接近边界的某个位置时,开始对波函数乘以一项衰减因子,越接近边界,这项因子就越趋近于 0,从而使得波函数在真的达到边界处时已经衰减为 0,数学上可以描述为

$$\Psi_{new}(x, t) = \begin{cases} \Psi(x, t), & 0 \leq |x| < x_d \\ \Psi(x, t) \cdot \left[\cos \left(\frac{|x| - x_d}{x_M - x_d} \frac{\pi}{2} \right) \right]^q, & x_d \leq |x| \leq x_M \end{cases} \quad (2-75)$$

其中 x_d 为开始衰减的临界位置, x_M 为空间网格边界位置, $x_d > 0$, $x_M > 0$, $-x_M \leq$

$x \leq x_M$ 。式中的衰减函数的形式是 \cos^q ，一般常见的取值有 $q = \frac{1}{6}$ 和 $q = \frac{1}{8}$ 。在经过每一步 Δt 的演化后，把得到的新波函数 $\Psi_{new}(x, t)$ 代替原来的波函数 $\Psi(x, t)$ ，再进行下一步的演化。

当然，衰减函数并不仅限于 \cos^q 的形式，比如还有一种形式是在哈密顿量中加入一个虚势阱 $i\mathcal{V}(x, t)$ ，同样这个虚势阱也是仅存在于边界附近 $x_d \leq |x| \leq x_M$ 的区域，这样，在该区域内，波函数的演化可以描述为

$$\Psi(x, t + \Delta t) = e^{-iH\Delta t} e^{-i[i\mathcal{V}(x, t)]\Delta t} \Psi(x, t), \mathcal{V}(x, t) < 0. \quad (2-76)$$

不难发现，这相当于在该区域内给波函数乘上了一项衰减因子 $e^{\mathcal{V}(x, t)}$ 。 $\mathcal{V}(x, t)$ 的具体形式也有很大的自由选择余地，总之就是让波函数在接近边界处平滑地衰减，到边界处恰好衰减为 0。

以上介绍了衰减边界，此外，还有透明边界和相干边界等边界处理方法，其宗旨都是将传播到边界区域附近的波函数吸收掉。其中，衰减边界和透明边界都只能获得被吸收波函数的几率幅信息，而相干边界则还能同时获取被吸收波函数的相位信息。不管是哪种边界处理方法，都是为了抑制波函数在边界的反射，从而使得数值模拟更贴近真实物理情境。

2.2.6 库仑势的选取

在前文对数值求解 TDSE 的介绍中，我们都采用了软核库仑势来描述原子核对电子的库仑作用。事实上，在理论计算中，为了探究不同的物理效应，人们尝试使用过许多种不同形式的库仑势模型，下面我们以一维模型的原子体系为例，对几种常用的库仑势形式进行简要介绍。

首先介绍本文研究工作中所使用的软核库仑势。如前文所述，虽然纯库仑势是对真实库仑势的最精确模拟，但纯库仑势 $V(x) = -1/|x|$ 在 $x = 0$ 处会产生奇点，不仅会造成非物理的能级简并 [287]，还会给计算机数值模拟带来麻烦。Q. Su 和 Eberly 等人提出一种模型势，在纯库仑势上添加一个软核参数，使得 $x = 0$ 处的势能为有限值，这种势称为软核库仑势 [288]，基本形式如方程 (2-39) 所示。从 (2-39) 式可以看出，当 $x \rightarrow \infty$ 时，软核势与真实库仑势趋于一致，这确保了库仑势的“长尾”具有完整性，因而可以确保各个激发态乃至高里德堡态能级的存在。

软核库仑势是一种典型的长程势，还有一种长程势，与之十分类似，其基本形式如方程 (2-77) 所示 [289]。

$$V(x) = -\frac{1}{\sqrt{x^2 + a^2} e^{-(x/a)^2}}. \quad (2-77)$$

式中的 a 同样是可调参数，这种模型势也能确保原子具有一系列激发态能级。

还有一类模型库仑势，与长程势对应，称为短程势。短程势的特点就是将库仑势的“长尾”截断，使得原子核只对很短的距离范围内的电子有库仑作用，这将造成原子只具有少数束缚态能级，高激发态能级会被排除在外。下面介绍几种比较常见的短程势。

短程势的一种基本形式如方程 (2-78) 所示 [290]。

$$V(x) = -ae^{-x^2/b}, \quad (2-78)$$

其中 a 和 b 为可调参数， a 控制势阱深度， b 控制库仑势衰减速度。

另外一种修正的 Pöschl-Teller 势，它是罕见的几个可以解析地求解本征态的势函数之一，并且在全能量域都有解析的本征态谱，其形式如方程 (2-79) 所示 [291]

$$V(x) = -\frac{a}{\cosh^2(bx)}, \quad (a > 0, b > 0). \quad (2-79)$$

与上一种短程势类似， a 控制势阱深度， b 控制衰减速度，它们的不同组合可以控制势阱内的束缚态个数和束缚态能量。束缚态的本征能量可以表示为

$$E_n = -\frac{b^2}{2}(C - n)^2, \quad (2-80)$$

其中参数 C 是 a 和 b 的函数，

$$C = \frac{\sqrt{1 + 8a/b^2} - 1}{2}. \quad (2-81)$$

第三种是软核汤川势 (soft-core Yukawa potential)，其基本形式如方程 (2-82) 所示 [291]。

$$V(x) = -a \frac{e^{-k\sqrt{x^2+b}}}{\sqrt{x^2+c}}, \quad (2-82)$$

其中包含四个可调参数： a 控制势阱深度， k 控制衰减速度，而 b 和 c 则影响库仑势曲线原点处的平滑程度。

此外，还有一种短程势与以上三种短程势模型都不同，是短程势的极端模型，称为零程势 (zero-range)，这种模型势往往被用来做解析计算而非数值计算，其基本形式如方程 (2-83) 所示 [292, 293]。

$$V(x) = \frac{2\pi}{\kappa m} \delta(x) \frac{\partial}{\partial x} x. \quad (2-83)$$

在零程势模型中，原子只有一个束缚态，其波函数为

$$\psi_0(x) = \sqrt{\frac{\kappa}{2\pi}} \frac{e^{-\kappa x}}{x}, \quad (2-84)$$

其中的可调参数 κ 可以控制束缚态能量 E_0 ，满足

$$E_0 = \frac{\kappa^2}{2m}. \quad (2-85)$$

以上介绍了一些理论计算中常见的原子库仑势模型，当然，在各种各样的理论研究中，也有很多其它的特殊形式的库仑势被采用。在本文第三章介绍的研究工作中，就采用了一种特殊的屏蔽式库仑势，用于探究原子核库仑势和激发态对高次谐波的影响，详见第三章。

2.2.7 高次谐波辐射谱的计算

前文已经介绍了一些求解 TDSE 的数值计算方法，根据量子力学基本原理，只要得到了体系的波函数，原则上就可以得到所有关于该体系的物理量信息，包括电子的电离概率、电子电离后的动量谱、生成的高次谐波谱等等。本文第一章已经对高次谐波进行了较为系统的阐述，本小节就以一维模型为例，介绍一下利用得到的波函数 $\Psi(x, t)$ 来计算高次谐波辐射谱的方法。

高次谐波的辐射功率与偶极矩在频域的模方成正比，因此首先要计算体系在时域的偶极矩 $d(t)$ ，然后再通过傅里叶变换得到频域的偶极矩。偶极矩可以分为长度、速度加速度三种形式，分别记为 $d_l(t)$ 、 $d_v(t)$ 和 $d_a(t)$ 。

长度形式的偶极矩最为简单直接，求的是电子空间位置 x 的期望值，计算表达式可写成

$$d_l(t) = \langle \Psi(x, t) | x | \Psi(x, t) \rangle. \quad (2-86)$$

速度形式的偶极矩稍为复杂，求的是电子速度（也即动量 p ）的期望值，需要动量空间波函数 $\Psi(p, t)$ 的信息，可表示成

$$d_v(t) = \langle \Psi(p, t) | p | \Psi(p, t) \rangle, \quad (2-87)$$

其中 $\Psi(p, t)$ 可由 $\Psi(x, t)$ 做傅里叶变换得到，如果求解 TDSE 用的是劈裂算符方法，则求解过程中本身就会得到 $\Psi(p, t)$ 。

加速度形式的偶极矩求的是电子加速度 a 的期望值，而加速度与电子受到的合力成正比，电子受到的力包括原子核的库仑力和外加激光的电场力，因此计算表达式可写为

$$d_a(t) = \langle \Psi(x, t) | -\frac{\partial V(x)}{\partial x} - E(t) | \Psi(x, t) \rangle. \quad (2-88)$$

这三种不同形式的偶极矩也分别对应了三种不同的高次谐波辐射功率谱形式，分别记为 $P_l(\omega)$ 、 $P_v(\omega)$ 和 $P_a(\omega)$ ，其中 ω 是谐波光子频率。假设数值模拟的演化时间范围是

$t \in [0, T]$, 则三种辐射谱分别可以表示为

$$P_l(\omega) = \left(\frac{\omega^2}{T}\right)^2 \left| \int_0^T d_l(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (2-89)$$

$$P_v(\omega) = \left(\frac{\omega}{T}\right)^2 \left| \int_0^T d_v(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (2-90)$$

$$P_a(\omega) = \left(\frac{1}{T}\right)^2 \left| \int_0^T d_a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (2-91)$$

通常情况下, 即使波函数是完全精确的, 以上三种不同形式的高次谐波辐射谱计算结果也不会完全相同 [294], 再加上数值计算得到的波函数不可能是完全精确的, 因此三者的结果必然有点差异, 采用哪种形式需要根据具体问题来决定。在本文的研究工作中, 主要采用的是方程 (2-91) 所示的偶极力 (加速度) 形式。另外值得一提的是, 在实际计算中, 往往要对偶极矩先乘以一个平滑窗口函数, 再对平滑后的偶极矩进行傅里叶变换, 关于这一点, 可参见第三章等后续章节关于计算细节的阐述。

2.3 强场近似理论

在第一章中, 我们已经介绍了高次谐波生成的几种理论模型, 并且提到其中的 Lewenstein 模型的基础是强场近似 (SFA) 理论。本节将给出更多关于 SFA 理论的介绍, 然后阐述在 SFA 框架下的高次谐波计算, 虽然计算是基于量子力学角度, 但得到的方程可以从经典角度很好地解释其物理内涵。

2.3.1 强场近似理论基本框架

SFA 理论往往也被称为 KFR 理论, 这是为了纪念对该理论的建立和发展起到最重要作用的三位科学家 L. V. Keldysh [54]、F. H. M. Faisal [295] 和 H. R. Reiss [296]。和求解 TDSE 一样, SFA 理论也是描述激光与物质相互作用的重要理论方法, 虽然不像 TDSE 结果那样高度精确, 但由于采用了一些物理近似, 因此在计算速度上会明显比求解 TDSE 更有优势, 同时也能对很多强场物理现象给出定性或定量的解释。

强场近似的适用条件是激光场强要足够高, 激光给予电子的电场力相对于库仑势对电子的束缚力而言不仅仅是微扰, 一旦电子被电离而进入连续态, 则电场力应远远大于库仑力。在满足以上条件的情况下, 就可以做如下的物理近似: 处于束缚态的电子, 库仑势作用占主导地位, 进入连续态的电子, 其运动则完全由激光场支配, 库仑势作用忽

略不计。值得一提的是，SFA 理论有一个基本假设是基态的电离耗尽效应不予考虑，因此，如果激光场太强以至于会导致耗尽效应，则需要在计算中引入一定的修正。

强场近似理论的核心是研究二能级系统的跃迁几率，既可以是束缚态—连续态跃迁，也可以是连续态—连续态跃迁。对于大多数研究电离和高次谐波的理论计算来说，最主要考察的是束缚态和连续态之间的跃迁，其中的束缚态通常就是基态，下面记为 $|\Psi_0\rangle$ ，而对于连续态来说，电子具有一个渐近动量 \mathbf{p} ，记为 $|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 。

假设电子在 t' 时刻处于基态，而在 t 时刻处于连续态 $|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle$ ($t > t'$)，那么这一跃迁过程可以描述为

$$M_{\mathbf{p}}(t) = \langle \Psi_{\mathbf{p}} | \hat{U}(t, t') | \Psi_0 \rangle, \quad (2-92)$$

其中 $M_{\mathbf{p}}(t)$ 称为跃迁矩阵元，表示发生跃迁的几率振幅，通常为复数。在 t 时刻观测到电子处于连续态 $|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 的几率 $P(t)$ 可以由跃迁矩阵元得到

$$P(t) = |M_{\mathbf{p}}(t)|^2. \quad (2-93)$$

方程 (2-92) 中的 $\hat{U}(t, t')$ 是一个时间演化算符，表征波函数随时间的演化过程，满足

$$\hat{H} \hat{U}(t, t') = i \frac{d}{dt} \hat{U}(t, t'). \quad (2-94)$$

由 2.2.1 小节内容可知，在速度规范下，

$$\hat{H} = \frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + V(\mathbf{r}). \quad (2-95)$$

按照强场近似的核心思想，电子被电离后在激光场中的运动是完全不受库仑势 $V(\mathbf{r})$ 影响的，因此电子的运动可以描述为

$$\hat{H}^V \Psi_{\mathbf{p}}(t) = \frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 \Psi_{\mathbf{p}}(t) = i \frac{\partial}{\partial t} \Psi_{\mathbf{p}}(t). \quad (2-96)$$

式中的 \hat{H}^V 称为 Volkov 哈密顿量。数学上可以证明，Volkov 哈密顿量在动量空间能够直接对角化，因此方程 (2-96) 的解可以写成

$$|\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle = e^{-iS(\mathbf{p}, t, t')} |\mathbf{p}\rangle, \quad (2-97)$$

其中 $|\mathbf{p}\rangle$ 表示渐近动量为 \mathbf{p} 的平面波，是动量算符的本征态，与位置坐标 \mathbf{r} 满足 $\langle \mathbf{r} | \mathbf{p} \rangle = (2\pi)^{-3/2} \exp(i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r})$ 。方程 (2-97) 中的 $|\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle$ 称为 Volkov 态（也称为 Gordon-Volkov 态），其中 e 指数中的相位

$$S(\mathbf{p}, t, t') = \frac{1}{2} \int_{t'}^t d\tau [\mathbf{p} + \mathbf{A}(\tau)]^2 \quad (2-98)$$

是激光场的经典作用量，通常也被称为 Volkov 相位。

由上一节内容可知，从速度规范到长度规范是引入了一个如公式 (??) 所示的么正变换。在 SFA 理论框架下，这个么正变换就相当于波函数在动量空间里作了一个平移，平移量大小为 $\mathbf{A}(t)$ 。所以，在长度规范下，Volkov 态 $|\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle$ 能方便地写出来

$$|\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle = e^{-iS(\mathbf{p}, t, t')}|\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)\rangle, \quad (2-99)$$

其中的 $S(\mathbf{p}, t, t')$ 意义和表达式与方程 (2-98) 是一样的。

下面将不考虑具体规范形式，对跃迁矩阵元 $M_{\mathbf{p}}(t)$ 给出进一步推导。时间演化算符 $\hat{U}(t, t')$ 满足

$$[\hat{H}_0 + \hat{H}_I]\hat{U}(t, t') = i\frac{d}{dt}\hat{U}(t, t'). \quad (2-100)$$

对上式两边进行积分，可得

$$\begin{aligned} \hat{U}(t, t') &= \hat{U}_0(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau \hat{U}(t, \tau) \hat{H}_I(\tau) \hat{U}_0(\tau, t') \\ &= \hat{U}_0(t, t') - i \int_{t'}^t d\tau \hat{U}_0(t, \tau) \hat{H}_I(\tau) \hat{U}(\tau, t'). \end{aligned} \quad (2-101)$$

这里 $\hat{U}_0(t, t')$ 对应的是 \hat{H}_0 作用项的时间演化算符， \hat{H}_I 在速度规范和长度规范下分别为 $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A}^2/2$ 和 $\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$ 。

将方程 (2-101) 代入方程 (2-92)，并利用连续态和基态的正交性 $\langle \Psi_{\mathbf{p}}|\hat{U}_0(t, t')|\Psi_0(t')\rangle = \langle \Psi_{\mathbf{p}}|\Psi_0(t)\rangle = 0$ ，可得

$$M_{\mathbf{p}}(t) = -i \int_{t'}^t d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}|\hat{U}(t, \tau) \hat{H}_I(\tau) |\Psi_0(\tau)\rangle. \quad (2-102)$$

接下去，将 $\hat{U}(t, \tau)$ 用 Volkov 时间演化算符 $\hat{U}^V(t, \tau)$ 来近似替代，将末态波函数 $|\Psi_{\mathbf{p}}\rangle$ 用 Volkov 态 $|\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle$ 来近似替代，其中

$$\hat{U}^{(V)}(t, \tau) = \int d^3\mathbf{p} |\Psi_{\mathbf{p}}^V(t, t')\rangle \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau, t')|. \quad (2-103)$$

这样即可得到

$$M_{\mathbf{p}}(t) = -i \int_{t'}^t d\tau \langle \Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau, t) | \hat{H}_I(\tau) | \Psi_0(\tau)\rangle. \quad (2-104)$$

方程 (2-104) 就是强场近似理论框架下描述量子态跃迁的表达式，其物理含义是：从初始时刻 t' 开始，在 \hat{H}_I 的作用下，在任意一个时刻 τ ，都有一定几率发生从初态 $|\Psi_0(\tau)\rangle$ 到末态 $|\Psi_{\mathbf{p}}^V(\tau, t)\rangle$ 的跃迁，对所有的时刻 τ 积分，就得到了总的跃迁几率振幅 $M_{\mathbf{p}}(t)$ 。

综上，强场近似理论的计算关键就是用 Volkov 态（平面波）来近似替代末态波函数，从而大大简化计算，需要注意的是，由于这种替代会破坏规范不变性，因此 \hat{H}_I 采用速度规范和长度规范得到的结果通常是不同的。

2.3.2 强场近似理论计算高次谐波

以上介绍了 SFA 理论模型，下面就介绍如何利用这个理论来计算高次谐波。

以长度规范为例，在 SFA 理论框架下，时域偶极矩 $d(t)$ 可表示为

$$d(t) = i \int_{-\infty}^t dt' \int d^3\mathbf{p} \langle \Psi_0 | \mathbf{r} | \mathbf{p} + \mathbf{A}(t) \rangle \times \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t') | \Psi_0 \rangle \exp\{-i[S(\mathbf{p}, t, t') - I_p(t' - t)]\}. \quad (2-105)$$

方程2-105给出了含时电偶极跃迁矩阵元的解析表达式，这个矩阵元的物理内涵其实就是三个过程的**几率振幅的乘积**：一是电子波包在 t' 时刻从基态隧穿电离而到达连续态，渐近动量为 \mathbf{p} ；二是从 t' 时刻到 t 时刻，电离后的波包在激光场中运动，并随着时间的演化而积累一个波函数相位因子 $\exp\{-i[S(\mathbf{p}, t, t')]\}$ ；三是在激光场作用下，电子波包又在 t 时刻返回母核并与之复合而跃迁到基态。

高次谐波辐射 $\tilde{d}(\omega)$ 同样也是依赖于 $d(t)$ 的傅里叶变换，可以由下式来描述：

$$\begin{aligned} \tilde{d}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} d(t) e^{i\omega t} dt \\ &= i \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^t dt' \int d^3\mathbf{p} \langle \Psi_0 | \mathbf{r} | \mathbf{p} + \mathbf{A}(t) \rangle \times \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t') | \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t') | \Psi_0 \rangle \\ &\quad \exp\{-i[S(\mathbf{p}, t, t') - I_p(t' - t) - \omega t]\}, \end{aligned} \quad (2-106)$$

其中 ω 是谐波光子频率。

方程 (2-106) 中被积函数的相位项 $S(\mathbf{p}, t, t') - I_p(t' - t) - \omega t$ 是高频振荡的，通常用鞍点近似方法 (saddle-point approximation) [297] 来近似求解，该方法在数学上是把相位项接近稳恒（导数趋近于 0）的被积函数挑选出来，而在物理上，也确实这部分函数对应的跃迁在整个强场与物质相互作用过程中作出最主要的贡献。因此，**鞍点近似方法可以简单有效地帮助我们提取和分析其中最主要的物理过程**。由鞍点近似法，可以从 (2-106) 式得到如下几个鞍点方程：

$$\int_{-\infty}^t dt' [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')] = 0, \quad (2-107)$$

$$\frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]^2 + I_p = 0, \quad (2-108)$$

$$\frac{1}{2} [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)]^2 + I_p - \omega = 0. \quad (2-109)$$

从以上的几个鞍点方程可以看出，这其实是把量子力学描述转化为了半经典描述，方程的物理内涵可以从经典力学粒子轨迹角度来解读。其中，方程 (2-107) 其实是表明

电子在空间上从电离出去到最后返回母核，即总位移为 0；方程 (2-108) 是表明在电离时刻 t' 的能量守恒；方程 (2-109) 则是表明电子与母核再次碰撞时刻 t 的能量守恒。符合这些条件的运动轨迹就是经典力学所允许轨迹，将所有的这些计算得到的经典力学允许轨迹的贡献进行相干叠加，便得到了总的 $\tilde{d}(\omega)$ ，由 $|\tilde{d}(\omega)|^2$ 便可得到 Lewenstein 模型中的高次谐波辐射功率谱。

2.4 Floquet 理论

Floquet 理论是一种研究非微扰相互作用的精确理论，作为一种典型的半经典模型理论方法，该理论将激光场视为经典电磁场，并充分利用激光场的周期性来简化对含时薛定谔方程的求解，这个理论的数学基础是 Floquet 定理。

假设激光与体系相互作用的势函数 $V(\mathbf{r}, t)$ 满足时间周期性

$$V(\mathbf{r}, t) = V(\mathbf{r}, t + T_0), \quad (2-110)$$

其中 T_0 为周期，一般认为 T_0 就是激光的光学周期，与激光的载波频率 ω_0 之间满足 $T_0 = 2\pi/\omega_0$ 。一般地，若将激光电场 $E(t)$ 视为单色平面波 $E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t)$ ，那么可以认为方程 (2-110) 的条件是满足的。这样，利用 Floquet 定理，就能将体系的波函数 $\Psi(\mathbf{r}, t)$ 表示成

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = e^{-i\varepsilon t} \phi(\mathbf{r}, t), \quad (2-111)$$

其中 $\phi(\mathbf{r}, t)$ 为时间周期函数，满足

$$\phi(\mathbf{r}, t) = \phi(\mathbf{r}, t + T_0). \quad (2-112)$$

(2-111) 式中的 ε 称为准能量 (quasienergy)，通常为复数，借助对波函数进行傅里叶级数展开等数学方法，经过一系列推导后，就可以得到关于 ε 的本征方程 [298]，从而把求解含时薛定谔方程的问题转变为求解不含时 Floquet 矩阵本征值的问题，不仅使计算更加方便，也使得物理意义更加简明。

1965 年，J. Shirley 最先使用 Floquet 理论来求解含时薛定谔方程，并很好地描述了二能级系统在周期性振荡的外场中如何随时间演化 [299]。到了 1980 年代晚期，在首次实验观测到高次谐波产生现象后不久，Potvliege 和 Shakeshaft 将 Floquet 理论应用于计算强场激光与原子相互作用产生的高次谐波辐射谱，并与使用微扰论进行计算的结果进行了对比，结果表明，微扰论无法准确描述阶次较高的谐波产率，尤其是在光强较大时，但非微扰的 Floquet 方法则可以得到更符合实际的高次谐波谱 [298]。

Floquet 理论基本上可以适用于任何激光场强和激光频率情形，但是由于它的核心基础是激光场的周期性，所以要求激光具有很好的单色性，并且激光脉冲的包络变化

相对于激光载波频率而言是缓变的(绝热近似)。因此,对于激光脉冲较长的情形,它可以得到非常准确的计算结果,但对于超短脉冲尤其是超强超短脉冲的情形,就无法再给出准确的结果。在实际计算中,只有在少数情况下才能进行精确的 Floquet 计算,因此往往需要根据不同条件对 Floquet 理论采用不同的近似方法,其中比较重要的有高频 Floquet 理论 (High-Frequency Floquet Theory, HFFT) 和 R 矩阵 Floquet 理论 (R-Matrix Floquet Theory, RMFT)。下面就分别对 HFFT 和 RMFT 这两种方法做简单的介绍。

HFFT 理论是由 Gavrilin 等人上世纪 80 年代发展起来的一种专门用于高频率强激光场的理论方法 [300]。这个理论的关键在于使用 Kramers-Henneberger (K-H) 坐标系 [301], 从而将薛定谔方程改写为

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2} + V(\mathbf{r} + \alpha(t)) \right] \phi(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial}{\partial t} \phi(\mathbf{r}, t), \quad (2-113)$$

其中 $\alpha(t) = \int^t \mathbf{A}(t') dt'$ 表示电子在激光场中振荡运动的位移, $\phi(\mathbf{r}, t)$ 是电子在 K-H 坐标系中的波函数。K-H 坐标系的物理内涵是: 电子本身不运动, 而是感受到一个随着时间周期性变化的原子核库仑势 $V(\mathbf{r} + \alpha(t))$ 。HFFT 理论就是处理高频极限下的 (2-113) 式, 把以极高频振荡的库仑势用其在一个光学周期内的平均值 $\bar{V}_0(r)$ 来等效, 从而将方程 (2-113) 转化为一个不含时的定态薛定谔方程来求解。HFFT 方法在激光频率越高的情况下计算结果越准确, 另外, 这个方法特别适用于处理连续态—连续态跃迁的问题。

RMFT 理论是 Burke 等人上世纪 90 年代初建立起来的理论方法 [302], 开始主要被用于研究多光子电离过程, 后来到了 90 年代晚期, Gebarowski 等人将这个方法推广到了高次谐波的理论计算 [303]。RMFT 方法的最大优点是可以计算多电子体系, 在计算中能够包含电子关联效应。假设一个原子共有 $N + 1$ 个电子, 则描述该原子与激光场相互作用的波函数演化方程可写为

$$\left[H_{0,N+1} + \mathbf{P}_{N+1} \cdot \mathbf{A}(t) + \frac{N+1}{2} \mathbf{A}^2(t) \right] \Psi(X_{N+1}, t) = i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(X_{N+1}, t). \quad (2-114)$$

式中的 $H_{0,N+1}$ 表示无外场时体系的哈密顿量算符, $X_{N+1} \equiv (x_1, x_2, \dots, x_{N+1})$ 代表整个系统的电子状态, 其中 $x_i \equiv (r_i, \sigma_i)$, r_i 和 σ_i 分别是第 i 个电子的空间坐标和自旋状态, $\mathbf{P}_{N+1} = \sum_{i=1}^{N+1} \mathbf{p}_i$ 是总动量算符。下面将波函数 $\Psi(X_{N+1}, t)$ 简写为 $\Psi(t)$, 并记 $\mathbf{R}_{N+1} = \sum_{i=1}^{N+1} r_i$, 则偶极矩 $d(t)$ 可表示为

$$d(t) = \langle \Psi(t) | \mathbf{R}_{N+1} | \Psi(t) \rangle. \quad (2-115)$$

接下去就利用 Floquet 方法和傅里叶级数展开, 将波函数 $\Psi(t)$ 写为它包含的各谐频成分

ψ_n 之和

$$\Psi(t) = e^{-i\varepsilon t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-in\omega t} \psi_n, \quad (2-116)$$

其中 ε 是准能量, $\varepsilon = \mathbf{Re}(\varepsilon) - i\Gamma/2$, Γ 为总电离率。这样, 就得到了 $d(t)$ 的表达式

$$d(t) = e^{-\Gamma t} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \langle \psi_m | \mathbf{R}_{N+1} | \psi_n \rangle e^{-i(n-m)\omega t}. \quad (2-117)$$

RMFT 方法的一个关键之处在于, 在具体计算 ψ_n 时, 需要把电子组态空间分成内外两个区域。所谓内区域, 就是指所有的 $N + 1$ 个电子都局限在半径为 a 的球体空间内, $r_i < a (i = 1, 2, \dots, N + 1)$, 所有电子之间的交换关联效应都是要考虑的。所谓外区域, 就是指其中一个电子在球体空间的边缘或者球体空间之外, 而剩下的 N 个电子仍局限在球体内, $r_i \geq a, r_{j \neq i} < a$, 那一个电子和其余 N 个电子之间的交换关联效应可以忽略不计。根据所处区域的不同, 分别用不同方法计算得到 ψ_n , 就能得到体系的偶极矩并最终得到高次谐波谱。RMFT 方法可以有效地处理多电子关联体系, 另外, 这个方法在计算双色激光场与原子相互作用的问题上取得了非常好的效果。

2.5 含时密度泛函理论

和 Floquet 理论类似, 含时密度泛函理论 (Time-Dependent Density Functional Theory, TDDFT) 也是为了简化求解含时薛定谔方程计算而发展起来的半经典理论模型。虽然求解含时薛定谔方程是最精确的对激光与物质相互作用的描述, 但是如果体系的电子数增加, 要考虑多电子关联效应的话, 那么体系庞大的自由度将会使直接求解薛定谔方程的计算量变得异常巨大, 即使是目前最先进的计算机集群也难以负担。在 1960 年代, Hohenberg、Kohn 和 Sham 为密度泛函理论 (Density Functional Theory, DFT) 的建立奠定了坚实的理论基础 [304, 305], 到了 1984 年, Runge 和 Gross 将 DFT 理论发展推广到了含时系统, 也就是现在的 TDDFT 理论 [306]。

TDDFT 理论的核心思想是利用含时的电子密度 $n(\mathbf{r}, t)$ 替代含时电子波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 来作为考察的变量, 进而利用含时密度来计算其它物理量。由于该理论以电子密度为基本变量, 所以即使体系电子数量增大, 体系的维数也依然保持不变, 大大降低了计算量。

TDDFT 理论将相互作用的多电子体系用具有相同含时电子密度的无相互作用系统来等效描述, 所以很适合处理多电子体系。对于 N 电子体系, 为了模拟含时过程, 需要求解相应的含时 Kohn-Sham 方程:

$$\hat{H}^{KS} \psi_j(\mathbf{r}, t) = i \frac{\partial}{\partial t} \psi_j(\mathbf{r}, t) \quad (j = 1, 2, \dots, N), \quad (2-118)$$

其中 $\psi_j(\mathbf{r}, t)$ 表示无相互作用的单粒子波函数, \hat{H}^{KS} 表示 Kohn-Sham 哈密顿量, 表达式为

$$\hat{H}^{KS} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_e[n(\mathbf{r}, t)]. \quad (2-119)$$

式中的 $V_e[n(\mathbf{r}, t)]$ 为有效势, 是电子密度的泛函, 可写成

$$V_e[n(\mathbf{r}, t)] = V_I(\mathbf{r}, t) + \int \frac{n(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + V_{xc}[n(\mathbf{r}, t)]. \quad (2-120)$$

在 (2-120) 式中, 右边第一项 $V_I(\mathbf{r}, t)$ 是通常意义上的激光场与体系相互作用势能项, 第二项积分是 Hartree 势能项, 而第三项 $V_{xc}[n(\mathbf{r}, t)]$ 是表征电子之间交换关联的作用项。 $V_{xc}[n(\mathbf{r}, t)]$ 作为电子密度的泛函是整个计算的关键难点, 需要使用一定的近似来写出其泛函形式, 一般较为常用的有局域密度近似 (local density approximation, LDA) 和广义梯度近似 (generalized gradient approximation, GGA)。求解 N 个相互独立的含时 Kohn-Sham 方程, 得到每一个 $\psi_j(\mathbf{r}, t)$ 后, 就能获得体系的含时电子密度

$$n(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^N |\psi_j(\mathbf{r}, t)|^2. \quad (2-121)$$

其它物理量均可以由含时电子密度的泛函形式 $F[n(\mathbf{r}, t)]$ 来表达。

例如, 要计算高次谐波, 需要先求得体系的含时偶极矩 $d(t)$, 而这就可以通过体系的含时电子密度来获得

$$d(t) = d[n(\mathbf{r}, t)] = \int \mathbf{r} \cdot n(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} = \sum_{j=1}^N \int \mathbf{r} |\psi_j(\mathbf{r}, t)|^2 d\mathbf{r}. \quad (2-122)$$

从上个世纪 90 年代开始, 就出现了利用 TDDFT 方法来计算高次谐波的理论研究。Tong 等人计算了氦原子在激光场作用下生成的高次谐波谱 [307], 不久后, 这类计算就推广到了分子体系, 如 Chu 等人计算了 N_2 分子的高次谐波辐射 [308]。最近, 基于 TDDFT 的高次谐波计算也开始被应用于研究固体材料, 这个方法可以很好地探究电子能带结构对高次谐波谱的影响 [309]。TDDFT 方法不仅在理论上很大程度上简化了对多电子复杂体系的描述, 而且在实际应用当中, 极大地降低了计算量。相比于直接数值求解 TDSE, TDDFT 理论在处理多电子体系方面有着独特的优势。

2.6 宏观传播效应

2.6.1 激光与高次谐波的宏观传播

前面几个小节所述的一些理论模型都是针对单个原子在激光场中响应的计算, 在实际的激光与介质作用生成高次谐波的实验中, 基频光 (驱动激光) 和高次谐波都会在宏

观介质中传播，最后得到的高次谐波谱必然包含了宏观传播效应，因此，要得到更符合实际情况的高次谐波谱，就应该在得到单原子响应的计算结果后，再加入描述宏观传播的计算。本节就将对高次谐波的宏观传播方面的理论研究进行介绍，其基础是求解麦克斯韦波动方程 (Maxwell wave equation)。

如前文所述，在半经典模型中，激光脉冲被视为经典电磁场，因此激光在空间中的分布和随时间的变化关系可以由其电场分量 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ 和磁场分量 $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ 来进行综合描述。在真空中，电场和磁场满足麦克斯韦波动方程组 (2-123) 式

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}.\end{aligned}\quad (2-123)$$

其中 c 表示真空中的光速。另外，电场和磁场还与标势 $\phi(\mathbf{r}, t)$ 和矢势 $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ 存在以下关系

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\nabla\phi - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \nabla \times \mathbf{A}.\end{aligned}\quad (2-124)$$

采用库仑规范，可以令标势 $\phi(\mathbf{r}, t) = 0$ ，这样，电场 \mathbf{E} 和矢势 \mathbf{A} 满足关系

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}.\quad (2-125)$$

并且电场和矢势均满足以下形式的齐次方程

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0,\quad (2-126)$$

$$\nabla^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0.\quad (2-127)$$

在经典光学和普通非线性光学领域，光在真空或介质中的传播都可以由麦克斯韦方程准确地描述，然而，当我们使用的光源变成超短超强激光脉冲时，由于其光强已经足以在介质中引起各种强场物理效应，超出了普通非线性光学领域的范围，因此必须在麦克斯韦方程的基础上加入对强场物理效应的考虑。随着超短超强激光脉冲技术的进步，

以及高次谐波和阿秒脉冲相关研究的发展,关于强激光以及高次谐波或阿秒脉冲在介质中的传播方面的理论研究也在上世纪 90 年代开始逐步发展起来 [208, 310–312]。

1999 年, Geissler 等人将光在介质中的传播理论从非线性光学领域推广到了强场物理领域,考虑了激光对介质的电离效应,以及生成的等离子体(密度较小的情形)对激光传播的影响 [313]。2000 年, Priori 等人建立了非绝热情况下的高次谐波宏观传播三维模型,并用脉宽分别为 30 fs 和 7 fs 的近红外激光脉冲与氦气进行作用,实验结果与他们的理论计算结果吻合得相当好,且明显优于仅考虑单原子响应的计算结果(见图 2-2) [204]。

Priori 等人的传播模型中,计算单原子响应的所采用的是 SFA 理论方法,此后不久,就出现了以求解 TDSE 计算单原子响应而后进行宏观传播的计算。Shon 等人用这种方法计算了高次谐波在静态气体靶室和充气波导中的传播,并与用 SFA 计算单原子响应再传播的计算结果进行了比较 [314]。Milosevic 等人进行了三维 TDSE 和三维宏观传播的综合计算,得到的高次谐波转化效率能与实验结果很好吻合 [315]。

除了最常见的 SFA 方法和求解 TDSE 方法之外,计算单原子响应还有其它一些理论方法,如定量再散射理论(quantitative rescattering theory, QRS)。QRS 理论由 C. D. Lin 研究小组提出 [316],是在 SFA 方法的基础上充分考虑散射波的动力学过程,因此在初期被称为散射波 SFA 方法(scattering wave SFA) [317],用 QRS 方法计算得到的单原子响应高次谐波的精确度可以和 TDSE 计算结果媲美,而计算耗时则相对 TDSE 计算而言要少得多,和 SFA 方法接近。他们用这种方法得到的单原子响应高次谐波再继续进行宏观传播计算,发现宏观高次谐波的产额可以表示为一个宏观波包与单原子复合偶极矩的乘积,这将对直接从实验测得的高次谐波谱中提取出作用气体介质的结构信息大有帮助 [318, 319]。

2.6.2 宏观传播的理论计算模型

当强激光与气体介质相互作用时,气体将会发生电离,产生自由电子,从而形成以一定频率振荡的等离子体。激光在这样的介质中传播时,光学衍射、非线性自聚焦、等离子体散焦等效应都会对其产生影响 [28, 320]。同样,激光与气体作用产生高次谐波后,这些效应也会影响高次谐波在介质中的传播。

激光脉冲在这种介质中的传播可由麦克斯韦方程来描述。考虑三维柱坐标系 (ρ, φ, z) ,其中 ρ 代表径向坐标, φ 代表角向坐标, z 为轴向坐标(亦即传播方向)。由于光束在传播方向上具有径向对称性,因此 φ 维度可不加以考虑。在这种情况下,激光电场 $\mathbf{E}_L(\rho, z, t)$ 的传播演化方程可以写为

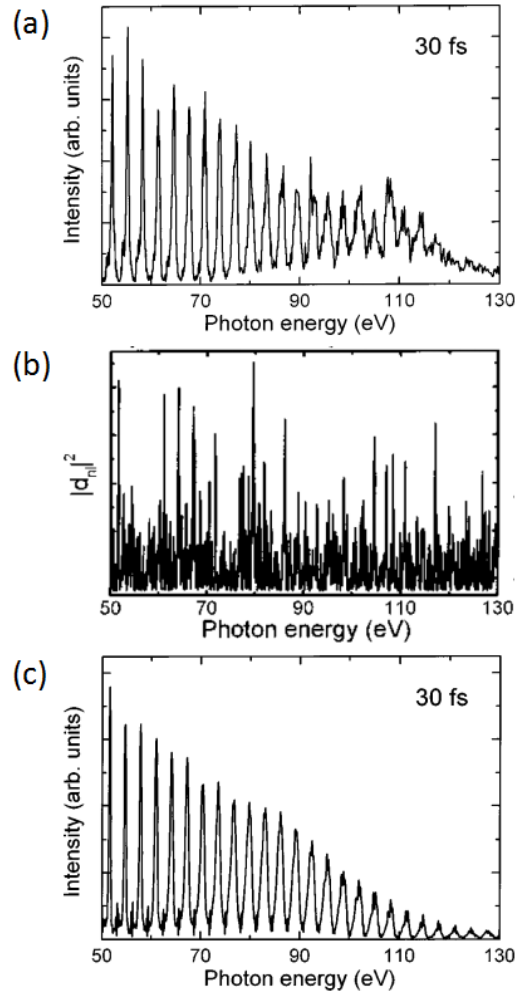


图 2-2 脉宽 30 fs 的近红外激光脉冲与氖气作用生成的高次谐波谱。(a) 实验结果。(b) 理论计算, 仅考虑单原子响应偶极矩的结果。(c) 理论计算, 在 (b) 图结果的基础上加入进一步宏观传播的结果。图片来自文献 [204]。

Fig 2-2 The high harmonic spectrum from the interaction between a 30 fs near-infrared laser pulse and Ne gas. (a) The experimental result. (b) The calculation result, considering only the dipole of single-atom response. (c) The calculation result, adding macroscopic propagation based on the result in (b).

$$\nabla^2 \mathbf{E}_L(\rho, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_L(\rho, z, t)}{\partial t^2} = \frac{\omega_P^2(\rho, z, t)}{c^2} \mathbf{E}_L(\rho, z, t), \quad (2-128)$$

其中, $\omega_P(\rho, z, t)$ 为等离子体频率, 与自由电子数密度 $N_e(\rho, z, t)$ 有关, 满足

$$\omega_P^2(\rho, z, t) = \frac{e^2}{\varepsilon_0 m} N_e(\rho, z, t), \quad (2-129)$$

其中 ε_0 表示真空介电常数, e 和 m 分别为电子电荷量和质量。自由电子数密度 $N_e(\rho, z, t)$ 由原子数密度 N_0 和电离率 $R(\rho, z, t)$ 决定,

$$N_e(\rho, z, t) = N_0 [1 - e^{-\int_{-\infty}^t R(\rho, z, \tau) d\tau}], \quad (2-130)$$

其中的电离率一般可由 ADK 理论来计算, 可参见公式 (1-8)。

在柱坐标系下, $\nabla^2 = \nabla_{\perp}^2 + \partial^2/\partial z^2$, 其中 ∇_{\perp}^2 代表和径向坐标 ρ 有关的求导项, 在忽略 φ 的条件下, $\nabla_{\perp}^2 = (1/\rho)(\partial/\partial\rho)(\rho\partial/\partial\rho)$ 。由于是要研究光的传播, 因此使用运动坐标系将使方程更为简洁。通过坐标平移变换, 令 $z' = z$, $t' = t - z/c$, 即可得到移动速度为 c 的运动坐标系。考虑到激光电场沿着 z' 传播方向的变化是相对缓慢的, 并且激光光束的尺度远远大于激光波长, 因此可以使用傍轴近似 (paraxial approximation), 即忽略掉 $\partial^2 \mathbf{E}_L(\rho, z', t')/\partial z'^2$ 项的影响。这样, 可以得到传播方程为

$$\nabla_{\perp}^2 \mathbf{E}_L(\rho, z', t') - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_L(\rho, z', t')}{\partial z' \partial t'} = \frac{\omega_P^2(\rho, z', t')}{c^2} \mathbf{E}_L(\rho, z', t'). \quad (2-131)$$

方程 (2-131) 虽然可以直接在时域求解, 但如果转换到频域, 就可以消除对时间的偏导数, 因此转换到频域进行计算更为方便, 也在实际计算中广为采用。对 (2-131) 式两边同时做傅里叶变换, 自变量时间 t' 转化为频率 ω , 可得

$$\nabla_{\perp}^2 \tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z', \omega) - \frac{2i\omega}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z', \omega)}{\partial z'} = \tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z', \omega), \quad (2-132)$$

其中,

$$\tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z', \omega) = \mathfrak{F}[\mathbf{E}_L(\rho, z', t')], \quad (2-133)$$

$$\tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z', \omega) = \mathfrak{F}\left[\frac{\omega_P^2(\rho, z', t')}{c^2} \mathbf{E}_L(\rho, z', t')\right]. \quad (2-134)$$

式中的 \mathfrak{F} 表示傅里叶变换算符。

对于高次谐波场 $\mathbf{E}_L(\rho, z, t)$ 来说, 它在介质中的传播可以由下式来描述:

$$\nabla^2 \mathbf{E}_H(\rho, z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_H(\rho, z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{non}(\rho, z, t)}{\partial t^2}, \quad (2-135)$$

式中的 $\mathbf{P}_{non}(\rho, z, t)$ 表示非线性极化强度,

$$\mathbf{P}_{non}(\rho, z, t) = [N_0 - N_e(\rho, z, t)]d(\rho, z, t), \quad (2-136)$$

其中 $d(\rho, z, t)$ 为单原子响应的偶极矩。

与基频光类似, 采用 (z', t') 坐标系和傍轴近似, 方程 (2-135) 可写为

$$\nabla_{\perp}^2 \mathbf{E}_H(\rho, z', t') - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_H(\rho, z', t')}{\partial z' \partial t'} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{non}(\rho, z', t')}{\partial t'^2}. \quad (2-137)$$

同样变换到频域, 可得

$$\nabla_{\perp}^2 \tilde{\mathbf{E}}_H(\rho, z', \omega) - \frac{2i\omega}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}_H(\rho, z', \omega)}{\partial z'} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \tilde{\mathbf{P}}_{non}(\rho, z', \omega), \quad (2-138)$$

其中

$$\tilde{\mathbf{E}}_H(\rho, z', \omega) = \mathfrak{F}[\mathbf{E}_H(\rho, z', t')], \quad (2-139)$$

$$\tilde{\mathbf{P}}_{non}(\rho, z', \omega) = \mathfrak{F}[\mathbf{P}_{non}(\rho, z', t')]. \quad (2-140)$$

需要注意的是, 以上所有方程都忽略了气体介质的线性色散和吸收, 一般用于产生高次谐波的实验所使用的气体介质密度都很低, 线性色散和吸收都很小, 故而采用这个近似是合理的。对于密度较大的气体介质, 则应考虑色散和吸收效应。

方程 (2-132) 和方程 (2-138) 可以采用 Crank-Nicholson 方法进行数值求解。下面以方程 (2-132) 为例简要介绍。首先选定初始空间平面 $z' = 0$, 在该平面 (即真空与介质的分界面), 激光脉冲具有进入介质前的初始电场分布 $\mathbf{E}_L(\rho, z' = 0, t')$, 由求解 TDSE 或 SFA 模型进行单原子响应计算, 得到该平面上的等离子体频率 $\omega_P(\rho, z' = 0, t')$, 并由方程 (2-134) 得到 $\tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z' = 0, \omega)$ 。对某一个特定的频率 ω , 方程 (2-132) 中的 $\tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z', \omega)$ 和 $\tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z', \omega)$ 可分别简化为 $\tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z')$ 和 $\tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z')$, 再由 ∇_{\perp}^2 的含义, 则该方程可化为

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z') + \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} \tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z') - \frac{2i\omega}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z')}{\partial z'} = \tilde{\mathbf{Q}}(\rho, z'). \quad (2-141)$$

根据方程 (2-141), 用 Crank-Nicholson 方法将偏导方程转化为数值差分矩阵方程求解, 即可得到激光在 $z' + \Delta z'$ 平面上的电场分布。再将该电场代入单原子响应计算, 得到新的等离子体频率 $\omega_P(\rho, z' = \Delta z', t')$, 并由方程 (2-141) 得到 $z' + 2\Delta z'$ 平面上的电场分布。以此类推, 即可得到激光在气体介质末端平面的电场分布。最后逐一扫描所有频率 ω , 即可得到完整的 $\tilde{\mathbf{E}}_L(\rho, z', \omega)$ 信息, 也就得到了完整的 $\mathbf{E}_L(\rho, z, t)$ 信息。

对于描述高次谐波传播的方程 (2-138), 先进行单原子响应计算, 求出偶极矩 $d(\rho, z', t')$, 并由此得到非线性极化强度 $\tilde{\mathbf{P}}_{non}(\rho, z', \omega)$, 其它步骤与求解激光脉冲的传

播方程完全类似，在此不做赘述。最后值得一提的是，在实际计算中，人们往往在求解宏观传播方程时每隔几步才进行一次单原子偶极矩计算，而非每一步都重新计算偶极矩，这样可以大大节省计算所耗时间。

2.6.3 宏观传播的物理效应

相比于单原子响应计算，加入宏观传播过程的计算无疑是更加贴近真实物理情况的，那么激光和高次谐波在宏观介质中的传播会带来哪些单原子响应计算无法得到的物理效应呢？下面对这些物理效应做一下简要介绍。

首先，我们知道，对单原子体系来说，高次谐波辐射强度会随着驱动激光椭圆偏率的增大而衰减。在上世纪 90 年代，Antoine 等人通过 SFA 模型对氖原子的计算发现，对某些特定阶次的谐波而言，谐波强度随激光椭圆偏率的衰减曲线会呈现出量子干涉结构，而宏观传播则会抹平这种干涉结构而使得曲线变得更平滑，并且衰减速度要比单原子计算的衰减速度更快 [321]。

同时，Antoine 等人还从合成阿秒脉冲链的角度考虑高次谐波的传播，他们的计算表明，对单原子响应来说，每半个激光周期里一般会出现好几个阿秒脉冲，且各个脉冲之间的相对相位是随机变化的，这对应于若干条不同的电子量子轨迹，而宏观传播则能从中挑选出单一的量子轨迹，从而使得输出的阿秒脉冲链具有很高的信噪比，每半个激光周期里只包含一个阿秒脉冲，且各个脉冲之间的相对相位保持锁定，另外，宏观传播对电子轨迹的挑选具有简便的可操控性，只要在实验中调节原子气体喷嘴和激光焦斑的相对位置即可实现 [222]。此外，三维的宏观传播计算表明，高次谐波在静态气体靶室和充气波导中的传播也同样具有挑选电子轨迹的效果 [314]。

宏观传播对高次谐波的产额也有影响，Midorikawa 小组的实验和理论研究表明，在激光与气体介质的作用区域比较长的情况下，驱动激光脉冲在介质中的自导引传播可能会形成一段等离子体通道，而这种等离子体通道会有助于高次谐波在气体介质里传播的过程中保持相位匹配，从而明显提升高次谐波的产额 [322]。

宏观传播不仅会对高次谐波产生影响，当然也会对驱动激光本身产生影响，激光在电离介质中的传播会在一定程度上使激光电场的时域波形和空间分布发生畸变并产生相位调制 [323]。还有理论研究表明，激光在高度电离且作用区域较长的介质中传播时，会引起激光的中心频率发生蓝移，但这种激光的动态频率调制对高次谐波辐射谱却影响甚微，这是因为高次谐波和激光在传播过程中会发生一定程度的空间分离；另外，由于激光在介质中的自散焦效应，激光峰值光强在经过一段距离的传播后会变小，从而导致高次谐波谱中出现两个截止区，截止能量分别对应于初始入射光强和散焦后的光强 [324]。

上述的几个研究都是基于单色驱动激光场的，事实上，双色驱动光场的传播效应研究也有不少。很多单原子响应计算已经表明，双色场组合往往可以有效提升高次谐波辐射强度，有理论研究指出，在考虑宏观传播效应的情况下，双色场组合依然能很好地提升谐波强度 [325]。另外，双色场有助于产生宽带超连续谱，单原子响应计算得到的超连续谱往往带有振荡调制结构，而宏观传播则可以改善超连续谱的时域特性，消除这种振荡结构，使超连续谱变得非常平滑，从而有利于合成单个阿秒脉冲 [326]。

第三章 原子库仑势在阈下和阈上谐波生成中的作用

3.1 引言

随着超短脉冲激光技术的快速发展,自从人们发现稀有气体中的高次谐波辐射现象后的几十年以来 [89, 90],人们对强激光场中原子分子产生高次谐波的物理过程和机理进行了广泛而深入的研究。

高次谐波的产生过程一般可以用半经典理论中的“三步模型”进行描述 [94]:首先,电子在激光场中发生隧穿电离;随后,脱离原子核的电子受到激光的电场力作用而在光场中运动;最后,电子返回母体离子并与之复合。在最后一步中,电子的动能和电离能转化为高次谐波光子。典型的高次谐波频谱有一个平台区,平台截止位置处的能量为 $3.17U_p + I_p$,其中 $U_p = I/4\omega_L^2$ 为有质动力能, I_p 为电离能。这里, I 为激光场强度, ω_L 为激光载波频率。在此模型中,电子在隧穿电离之后,原子核库仑势对其作用就忽略不计了。除了半经典模型以外,诸如 Lewenstein 等人提出的强场近似理论 [96] 的量子力学模型也能较好地描述高次谐波产生的过程。高次谐波生成的过程当然也可以通过求解含时薛定谔方程来进行数值模拟,这种方法可以完整地考虑库仑势在整个物理过程中的影响。

研究高次谐波具有重要意义,用相干的高次谐波合成的阿秒脉冲 [222, 224–226, 228, 231, 327],可以作为一种时间标尺,其时间分辨率能达到空前的高度 [1, 328–332]。另外,高次谐波携带有原子分子的基本结构信息 [333],因此通过诊断高次谐波辐射谱,我们就可以对原子分子的内部结构一探究竟。

在以往的大量高次谐波研究工作中,虽然已经广泛涉及各种作用靶体系——原子、分子乃至固体 [152, 190, 195, 334, 335],各种激光场形式——不同的偏振状态 [334, 336] 和多色场组合 [337, 338],但是人们关注的基本全都是能量高于电离阈值 I_p 的谐波,即阈上谐波。这主要是因为半经典模型和强场近似模型都忽略了电子电离之后的原子核库仑势。由于电子回到母核时的动能 E_k 最小值为零,因此,电子与母核复合回到基态后,所释放的谐波光子能量 $E_{har} = E_k + I_p$ 的最小值为 I_p 。

然而近几年来,人们对阈下谐波产生了越来越大的兴趣。Yost 等人进行了 1070 nm 强激光场和氙原子气体相互作用的实验,发现阈下谐波和近阈谐波 (7~13 阶) 有多个产生通道,并揭示了阈下谐波对于将光学频率梳技术革命性地推广到真空紫外频段具有重要价值 [339]。此后,对铯原子 [340] 和准直排列的氮气、氧气分子 [275] 的实验表明,阈下谐波的生成应该还存在微扰论解释 [341] 以外的未知机理。

基于已有的实验现象,许多理论研究随之出现。由于传统的用于描述阈上谐波的半经典三步模型并不完全适用于解释阈下谐波现象,因此人们通过引入库仑势的影响,提出了更广义的模型 [275, 342]。在考虑原子核的库仑势场的情况下,当电子返回离子核附近时,如果动能的绝对值足够小,则其总能量 E_{tot} 可能为负值。总能量为负值的电子回到基态,所释放的谐波光子能量就会小于电离阈值 I_p 。除此之外,阈下谐波还可以从束缚态—束缚态共振跃迁的角度来解释。Chini 等人观察到了原子内部共振跃迁所导致的近阈谐波的增强现象 [343]。Xiong 等人通过数值模拟,对阈下谐波的产生机理进行了系统分析,提出了光子吸收和光子释放过程中的两种共振机制 [344],不仅能解释依赖于激光波长的阈下谐波现象,而且通过改变激光波长和光强,可以将量子干涉效应 [345] 和库仑势效应对阈下谐波的影响加以区分。基于先前的量子干涉模型 [345], He 等人利用量子路径分析方法探究了阈下谐波与激光波长的相关性 [346],但其激光强度要高于文献 [344] 中所使用的激光。Camp 等人探究了氦原子阈上谐波和阈下谐波生成过程中,共振增强和量子路径动力学之间的相互作用,并分析了特定阶次谐波的增强效应和相移效应 [347]。Li 等人通过分析氦原子和铯原子生成的高次谐波谱,揭示了在原子生成的阈下谐波和近阈谐波的过程中,那些发生过多重散射的量子轨迹的动态作用 [348, 349]。Avanaki 等人观察到了拉伸的 H_2^+ 分子离子在线偏振和圆偏振激光场中生成的阈下偶次谐波 [350]。Dong 等人通过理论计算,模拟了 H_2^+ 分子离子在线偏振激光场中的准直排布和阈下谐波辐射,并讨论了阈下谐波的偏振状态如何依赖于其准直方向 [351]。此外, F. Brizuela 等人引入“双室 (dual-cell) 结构”,即先在“播种室”生成阈下谐波,然后将阈下谐波作为种源,在后续光路的“生产室”用来促进高次谐波的产生过程,该实验表明,这种利用阈下谐波来协助激发高次谐波的方式可以极大提升谐波转化效率,从而生成稳定的高强度阿秒极紫外光源 [352]。最近, Xiong 等人研究了阈下谐波与受挫电离 (frustrated tunneling ionization) [353] 之间的对应关系 [277]。

本文从两个方面研究了强激光场中氢原子辐射的高次谐波:一是通过屏蔽库仑势,改变束缚态电子的能级,从而对阈下谐波频谱中出现的干涉结构进行有效的调制;二是探究库仑势在阈上和阈下谐波生成中所起的不同作用。阈下谐波由束缚态—束缚态跃迁和连续态—束缚态跃迁产生,并且某些特定阶次的阈下谐波峰会呈现出与库仑势相关的法诺共振线型。我们发现,通过调节激光的椭偏率和库仑势的屏蔽半径,阈下谐波和阈上谐波这两者的强度改变方式并不相同。这说明,电子重散射时的动能不同,那么电子在激光缀饰的库仑势场中的响应行为也会不同。

3.2 数值模型

为研究高次谐波产生过程，我们数值求解二维薛定谔方程（除特别说明外，均使用原子单位 a.u.）

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, y, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + V(x, y) + x \cdot E_x(t) + y \cdot E_y(t) \right] \Psi(x, y, t), \quad (3-1)$$

其中，屏蔽的库仑势为

$$V(x, y) = \begin{cases} -\frac{1}{\sqrt{r^2 + s}} \exp[-(r - r_0)^2/2], & r > r_0 \\ -\frac{1}{\sqrt{r^2 + s}}, & r \leq r_0 \end{cases} \quad (3-2)$$

这里， $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ ， r_0 为 $V(x, y)$ 的屏蔽半径。软核参数 $s = 0.64$ 用以消除库仑势函数中的奇点，同时使得系统的基态能量为 -0.5 a.u.。为了探究长程库仑势的影响，在计算过程中我们采取逐渐减小 r_0 的方法来屏蔽越来越多的长程库仑势。图3-1(a)和图3-1(b)展示了二维模型下正常库仑势与受屏蔽库仑势的对照。在后面的小节中，我们将深入探讨库仑势受到屏蔽后对高次谐波谱的各种影响。

具有高斯型包络的椭圆偏振激光场方程如下：

$$\mathbf{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} [\cos(\omega_0 t) \hat{\mathbf{x}} + \epsilon \sin(\omega_0 t) \hat{\mathbf{y}}] \exp[-2 \ln 2 (t/\tau)^2]. \quad (3-3)$$

这里， E_0 为电场振幅， ω_0 为中心载波频率， ϵ 为椭偏率， τ 为脉冲宽度， $T_0 = 2\pi/\omega_0$ 为激光的周期。我们用虚时间演化法求得原子屏蔽库仑势的基态电子波函数，并用 Crank-Nicholson 方法 [286] 对电子波函数进行传播。计算过程中，取空间步长和时间步长 $dx = dy = dt = 0.2$ a.u.。计算区域划分为 1000×1000 的网格，两个方向的跨度分别为 $x \in [-100, 100]$ ， $y \in [-100, 100]$ 。取 $\cos^{1/6}$ 形式的衰减函数，以此抑制网格边界处的非物理反射。利用含时波函数，可以得到 x 和 y 方向的含时偶极力（加速度）分别为

$$f_x(t) = \int \int dx dy |\Psi(x, y, t)|^2 \left[-\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} \right], \quad (3-4)$$

$$f_y(t) = \int \int dx dy |\Psi(x, y, t)|^2 \left[-\frac{\partial V(x, y)}{\partial y} \right]. \quad (3-5)$$

通过傅里叶变换即可得到高次谐波辐射功率谱 $P(\omega)$ 为

$$P_{x,y}(\omega) = \frac{1}{T^2} \left| \int_0^T dt W(t) f_{x,y}(t) e^{-i\omega t} \right|^2, \quad (3-6)$$

其中， T 为总演化时间， $W(t) = \exp[-(t/\sigma)^2]$ 为高斯型窗口函数 [354]，用来消滅 $f_{x,y}(t)$ 的起始端和末端突变引起的噪声。在我们的计算中， σ 是可调参数，一般根据激光脉冲宽度来设定。

3.3 高次谐波中的法诺共振以及库仑屏蔽势的影响

3.3.1 瞬态吸收谱与法诺共振

在第一章曾经提到，超短激光脉冲可以应用于各种超快光谱学技术，包括时间分辨荧光技术和瞬态吸收光谱技术等等。由于荧光一般只从原子或分子体系的最低激发态辐射，强度正比于最低激发态的粒子数布居，因此只能研究最低激发态辐射的动力学过程。对于涉及高激发态和非辐射产物的动力学过程，荧光光谱技术就无法观测了。瞬态吸收光谱技术则打破了这方面的局限性，该技术充分利用了非辐射态可以吸收激光光子而向高激发态跃迁的特点，能得到非辐射态的粒子数布居，同时辐射态也能通过受激辐射过程而被观测到。所以，瞬态吸收光谱技术可以更加全面地探测整个体系的超快动力学过程，在复杂体系的超快过程研究中发挥着非常重要的作用。

瞬态吸收光谱的基本原理也是泵浦—探测方法，一束泵浦光在 $t = 0$ 时刻激发样品，改变体系的电子态布居情况，一束探测光则通过延迟线在 δt 时刻与泵浦光在样品作用区域重合，探测光的光强被记录下来，并与没有泵浦光情形时的光强相比较。假设样品厚度为 L ，探测光的初始光强为 $I_0(\nu)$ ，其中自变量 ν 是表示光强的频谱分布。根据 Beer-Lambert 原理，通过样品后的光强 $I(\nu, 0)$ 为

$$I(\nu, 0) = I_0(\nu) \times e^{-\rho_\nu N(0)L}, \quad (3-7)$$

经过时间 δt 后，通过样品后的光强 $I(\nu, \delta t)$ 为

$$I(\nu, \delta t) = I_0(\nu) \times e^{-\rho_\nu N(\delta t)L}, \quad (3-8)$$

其中， ρ_ν 为样品对频率为 ν 的光子的吸收系数， $N(0)$ 和 $N(\delta t)$ 分别表示在 $t = 0$ 时刻和 $t = \delta t$ 时刻吸收频率为 ν 光子的粒子数。在 $t = 0$ 时刻和 $t = \delta t$ 时刻，样品的吸收光学密度 (optical density, OD) 值分别为

$$\text{OD}(\nu, 0) = \ln \frac{1}{\text{Trs}(\nu, 0)}, \quad (3-9)$$

$$\text{OD}(\nu, \delta t) = \ln \frac{1}{\text{Trs}(\nu, \delta t)}, \quad (3-10)$$

其中 Trs 表示透射率。由此可得，OD 值的变化量为

$$\Delta \text{OD}(\nu, \delta t) = \ln \frac{\text{Trs}(\nu, 0)}{\text{Trs}(\nu, \delta t)} = \ln \frac{I(\nu, 0)}{I(\nu, \delta t)}. \quad (3-11)$$

结合 (3-7) 式和 (3-8) 式，可得

$$\Delta \text{OD}(\nu, \delta t) = \rho_\nu [N(\delta t) - N(0)]L. \quad (3-12)$$

由以上推导可知,对于厚度和吸收系数相对固定的样品来说,吸收 OD 值的变化量正比于某一能级在激发延时 δt 后的布居数变化量,因此,只要测得每个时刻的瞬态吸收光谱,就能得到特定能级的状态随时间演化的动力学过程。

随着阿秒脉冲技术的诞生和发展,瞬态吸收光谱技术的分辨率现在已经能达到阿秒量级,称为阿秒瞬态吸收光谱技术,是在先前飞秒瞬态吸收光谱技术 [355] 基础上的又一次飞跃,也是阿秒科学的在光谱技术领域的重要应用。

阿秒瞬态吸收光谱技术的实现通常是靠一束阿秒脉冲和另一束时间延迟的飞秒激光脉冲。首先,具有超大频谱带宽的阿秒脉冲将原子或分子体系的基态电子泵浦到各个激发态和连续态,随后,用飞秒激光脉冲去触发不同束缚态之间的耦合或束缚态与连续态之间的耦合,从而改变体系对阿秒脉冲的吸收响应。由前文的论述可知,这种吸收响应具体的改变量完全取决于飞秒脉冲从哪个时刻开始作用于该体系,因此只要对时间延迟量 δt 进行扫描,得到一系列吸收光谱,就可以获知原子或分子体系的结构及其内部电子状态的超快演化过程。值得注意的是,这种阿秒脉冲与飞秒激光脉冲组合的方案也有另外一种理解角度,即:原子或分子体系的各个束缚态先被较强的飞秒激光场缀饰,而后这些缀饰态吸收阿秒脉冲的宽频谱光子,飞秒激光脉冲的瞬时场强决定了这些缀饰态的能级,从而影响体系对阿秒脉冲的吸收响应。

阿秒瞬态吸收谱的首次实际物理应用是在 2010 年,美国和德国的多家单位展开合作研究,使用这种技术来探测处于相干叠加态的电子波包的演化,成功地实时观测到了 Kr 原子的价电子亚飞秒时间量级的超快运动 [356]。同年, Wang 等人用该技术来探测 Ar 原子的自电离过程以及伴随的法诺共振,并从吸收谱中法诺共振峰的形状变化来探究自电离态和连续态之间的动态耦合 [357]。

法诺共振现象在基于吸收光谱技术的各类物理研究中十分常见,因此是非常重要的研究对象,下面就对它进行简要介绍。1960 年代, U. Fano 为了研究原子组态相互作用在吸收光谱中的效应而建立了一套共振理论模型 [358, 359], 后被称为法诺模型。该模型很好地定量解释了 Lassetre 等人先前在 He 原子吸收谱中观察到的非对称共振峰现象,并深入地描述了原子自电离态和连续态之间的耦合作用对共振峰强度和相位的影响。从法诺模型建立以来,人们对法诺共振现象展开了广泛的理论分析和实验研究。在过去的大量研究中,拥有两个电子的 He 原子是最简单而又最典型的考察体系。He 原子的电离可以有两种途径:一种是在激光场的作用下发生直接单电离,即电子直接从基态释放出去,另一种是电子先被激光泵浦到双激发态(如 $2s2p$ 态、 $2p^2$ 态等),由于双激发态的能量高于第一电离能,因此处于双激发态的电子可以在一段时间过后发生自电离(autoionization)。直接电离和经由激发态的自电离这两种电离通道可能发生干涉,从而在原子吸收光谱中形成非对称共振峰,这种干涉效应就称为法诺干涉(Fano interference)

或法诺共振 (Fano resonance), 吸收谱中的非对称线型称为法诺线型 (Fano line shape, or Fano profile)。描述吸收光谱中的法诺线型的方程可以写为

$$\sigma_F(E) = \sigma_0 \frac{(q + \epsilon)^2}{1 + \epsilon^2}, \quad (3-13)$$

其中 $\sigma_F(E)$ 表示吸收谱的吸收截面, 是能量 E 的函数, 下标 F 表示能量在法诺共振能量附近的范围, σ_0 表示在远离共振能量处的吸收截面, ϵ 代表约化能量参数, 表征能量与共振能量的差距, 可以写成

$$\epsilon = \frac{E - E_r - \delta E}{\Gamma/2}. \quad (3-14)$$

在 (3-14) 式中, E_r 为共振能量, Γ 是共振态的线宽, 与共振态寿命 τ_r 成反比关系, 值得注意的是, 共振能量峰的位置可能会在激光的作用下发生微小的偏移, 因此引入 δE 来表示这个偏移量, 但在很多情况下, δE 的影响在理论研究中往往都可以忽略不计。在方程 (3-13) 中, 最重要的特征参数就是 q , 往往被称为“法诺 q 参数”, 这个参数在数学上表征了法诺共振峰的不对称程度, 在物理上则反映了电子经由上述的两种电离通道发生电离的相对概率大小。

在理论计算中, 吸收谱 $\sigma(E)$ 可以通过频域偶极矩 $\tilde{d}(E)$ 来表示,

$$\sigma(E) = -4\pi\alpha E \mathbf{Im} \left[\frac{\tilde{d}(E)}{\tilde{E}_L(E)} \right], \quad (3-15)$$

其中 α 是精细结构常数, $\tilde{d}(E)$ 和 $\tilde{E}_L(E)$ 分别是时域偶极矩 $d(t)$ 和激光电场 $E_L(t)$ 的傅里叶变换结果。

3.3.2 高次谐波中的法诺共振

传统的对于法诺共振的研究局限在时间积分的吸收光谱中 [360–362], 随着超强飞秒激光脉冲和阿秒脉冲等新型光源的诞生以及泵浦—探测等技术的成熟, 人们已经可以从时间分辨的吸收光谱来观测法诺共振, 实现了对于时间分辨法诺共振的理论预言 [363, 364], 并且时间分辨率已经可以达到亚飞秒和阿秒量级 [357, 365, 366]。近几年来, 实验结果 [367, 368] 和理论计算 [369] 都表明, 吸收光谱中的谱线形态还可以通过调节激光参数得到高度精确的操控。

虽然过去几十年里法诺共振的研究已经十分广泛, 但主要还是局限在原子吸收谱中, 而对于原子辐射谱, 尤其是高次谐波辐射谱中的法诺共振现象的探究相对来说则很少。另一方面, 对法诺共振的研究可以很自然地由双电子体系 (氦原子) 推广到更复杂的多电子体系中, 因为在多电子体系中自电离态能级更多, 其光谱中出现法诺共振现象

是理所当然的，那么在比氦原子更简单的体系中，比如氢原子，在其光谱中是否也可能出现法诺共振现象呢？在本章接下去的讨论中，我们将会论证，氢原子尽管是不存在自电离态的单电子系统，不会发生自电离过程，但在其高次谐波辐射谱中同样可能出现法诺共振峰，而出现的能量范围就在阈下谐波的频段。

我们首先计算了线偏振激光场中氢原子的高次谐波辐射谱，激光偏振方向沿着 x 轴方向。本文中，所有的高次谐波谱均由 x 方向的偶极加速度 $f_x(t)$ 计算得出。在二维氢原子模型中， $n=2$ 态（第一激发态）与 $n=1$ 态（基态）之间的能级差 $\Delta E_{1,2} = 0.316$ a.u.。为了使法诺共振便于观察，我们特地选取了 $\Delta E_{1,2}$ 的 $1/5$ 作为激光频率，即 $\omega_0 = 0.0632$ a.u.。图3-2(a) 中的红色实线为驱动激光脉冲产生的高次谐波频谱，其中激光强度为 5×10^{12} W/cm²，脉冲宽度为 5 个光学周期。与典型的阈上谐波不同，这里的高次谐波谱中未出现明显的平台区和截止频率。如文献 [344] 所述，五阶谐波既可以由连续态—束缚态跃迁产生，也可以由束缚态—束缚态跃迁产生。与仅由连续态—束缚态跃迁产生的长短轨道干涉不同，束缚态—束缚态跃迁和连续态—束缚态跃迁之间的干涉将会在辐射谱中形成法诺共振，从而出现法诺线型，如图3-2(a) 的内插子图所示。

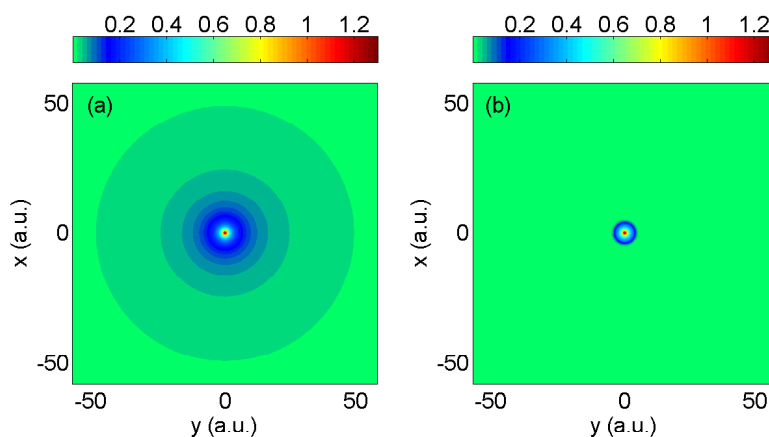


图 3-1 二维氢原子模型下正常库仑势和受屏蔽库仑势的对比示意图。
(a) 正常情况下的未屏蔽库仑势。(b) 受屏蔽的库仑势，屏蔽半径 $r_0=3$ 。
两图中的势能均为绝对值。

Fig 3-1 Comparison of the normal Coulomb potential and a screened Coulomb potential of a 2D hydrogen atom. (a) Coulomb potential without screening. (b) Screened Coulomb potential with $r_0=3$. Absolute values are used for the potentials in both plots.

图3-3所示的时频分析的结果更加清楚地表明五阶谐波有两种产生渠道 (关于时频

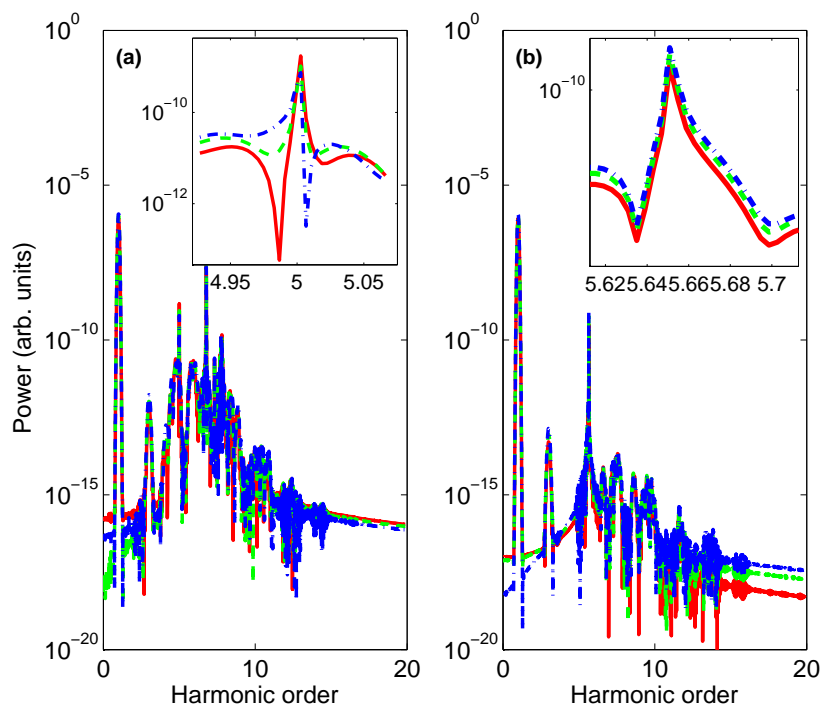


图 3-2 (a) 二维氢原子模型下计算得到的高次谐波频谱。其中激光场频率 $\omega_0 = 0.0632$ ，脉宽 $\tau = 5T_0$ ，激光为线偏振，沿 x 轴方向。三条曲线分别代表不同的激光强度： $I = 5 \times 10^{12}$ W/cm 2 （红色实线）， $I = 6 \times 10^{12}$ W/cm 2 （绿色虚线）和 $I = 7 \times 10^{12}$ W/cm 2 （蓝色点划线）。(b) 库仑势被屏蔽后计算得到的高次谐波频谱，屏蔽半径 $r_0=3$ ，激光场参数同 (a)。(a) 和 (b) 中的内插子图均为各自谐波频谱中第五阶谐波附近的局部放大图。

Fig 3-2 (a) HHG spectra calculated in the 2D model with the laser parameters $\omega_0 = 0.0632$, $\tau = 5T_0$. The laser is linearly polarized along the x direction. The three curves are calculated with three different laser intensities $I = 5 \times 10^{12}$ W/cm 2 (red solid line), $I = 6 \times 10^{12}$ W/cm 2 (green dashed line) and $I = 7 \times 10^{12}$ W/cm 2 (blue dashed-dotted line). (b) The same laser parameters as in (a), but a screened Coulomb potential with $r_0=3$ is used. Both insets in (a) and (b) show the zooms of the spectra near their respective fifth harmonics.

分析的计算细节介绍可参见第四章，做时频分析计算的 MATLAB 源代码可见附录)。

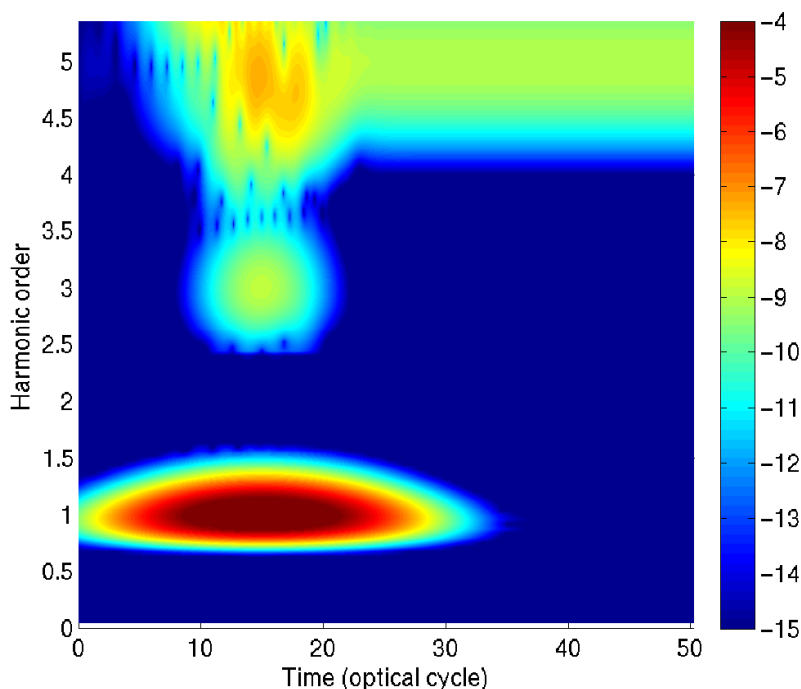


图 3-3 偶极矩的时频分析。其中激光场参数 $\omega_0 = 0.0632$, $\tau = 5T_0$, $I = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 。为便于观察，此处仅绘出前 50 个光学周期的时间范围和最低几阶谐波的频率范围。

Fig 3-3 Time-frequency analysis of the dipole moment calculated with the laser parameters $\omega_0 = 0.0632$, $\tau = 5T_0$, $I = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. For a better visualization, only the first 50 optical cycles of time range and the first several harmonics frequency range are displayed.

激光脉冲开始作用于氢原子之后，即使是微弱的光强也能使部分电子波函数从基态跃迁到第一激发态，在第一激发态一旦有了布居之后便形成一个较弱的偶极振荡，振荡频率为两个态之间的能量差，即激光光子能量的五倍。随着时间演化和电离概率的增加，三阶、五阶等奇数阶次谐波逐渐出现。激光脉冲结束后，电离也随之停止，但电子叠加态所形成的偶极振荡还会继续辐射五阶谐波的能量。两种途径产生的五阶谐波发生法诺共振干涉，在辐射光谱中的五阶谐波能量处便形成了非对称法诺线型。为了进一步验证法诺线型确实源自法诺干涉，我们改变激光强度 I ，并观察这里的法诺线型是否会随着光强的微小变化而发生改变。氢原子在光强为 $6 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 和 $7 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 的激

光场中所生成的高次谐波谱分别如图3-2(a)中的绿色虚线和蓝色点划线所示。当激光强度较弱时,对低能级束缚态能量改变影响不大,因此在束缚态—束缚态跃迁(从 $n=2$ 到 $n=1$ 态)中,激光引发的相位改变可以忽略不计。然而,连续态—束缚态跃迁产生的相位与 U_p 有关,因此会随激光强度变化而变化。法诺干涉线型由两种通道的相位差所主导,所以该线型的具体形状(通常由法诺参数 q 值来表征)会对激光强度变化很敏感。由图3-2(a)内插子图可以看出,随着激光强度从 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 变化到 $6 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 再变化到 $7 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$,五阶谐波频率处法诺线型的 q 值从正值(共振峰先降后升)变到接近正无穷(对称的洛伦兹型峰),随后再变为负值(共振峰先升后降)。以上讨论的都是原子核库仑势没有经过屏蔽的情形,如果库仑势被屏蔽,情况则会不同。束缚态各能级将会随着屏蔽半径的变化而各自发生移动,不同能级之间的能量差也自然随之而变。例如,当屏蔽半径 $r_0=3 \text{ a.u.}$ 时,基态与第一激发态之间的能量差会变为 $\Delta E_{1,2} = 0.357 \text{ a.u.}$ 。由它们之间跃迁产生的分立峰能量会改变,而由连续态—束缚态跃迁产生的五阶谐波峰的能量则不受库仑势影响保持不变,从而两个峰在频谱上分离开来。此时法诺共振不再存在,法诺线型消失,如图3-2(b)及其内插子图所示。这种情况下,由于不再构成法诺共振峰,五阶谐波峰的形状和束缚态跃迁分立峰的形状均对激光强度的改变不敏感,光强的微小改变几乎对峰的形状没有影响。由此,我们证明了在特定激光条件下,单电子体系的光谱中也能出现法诺线型,并不一定需要自电离态能级。在文献[368]中,Ott等人描述了在氦原子单激发态的吸收光谱中也可以出现法诺线型,而且光谱中的特征峰既可以从洛伦兹型转变为法诺型,也可以从法诺型转变为洛伦兹型,可通过激光参数来调控。在他们所述的那种现象中,其原理实际上是激光场对原子激发态的缀饰会在其振荡衰减过程中引入一个初始相位,而这个初始相位的存在就会“伪造”出原子构型作用下的法诺干涉效果,并最终在频谱中形成法诺线型。我们的工作与文献[368]最根本的区别在于,除了激光场引入的相位变化以外,在我们的体系中的确存在两个真实干涉源,即束缚态—束缚态跃迁和连续态—束缚态跃迁,这两者能够产生能量相同的辐射光子,因此我们高次谐波谱中的法诺线型来源于真正的法诺干涉,而不是仅仅由初始相位模拟出来的“法诺干涉”。值得一提的是,如果在光电离的过程中,体系的中间束缚态起到重要作用,那么在该体系的光电子能谱中也可能出现类似法诺线型的非对称谱线形态[370]。

简而言之,对于阈上谐波而言,法诺干涉只能在多电子体系中产生,辐射的谐波能量等于基态与某个阈上自电离态之间的能量差[371]。而对于阈下谐波来说,法诺干涉可以发生在单电子体系中,连续态—束缚态跃迁所产生的谐波和束缚态—束缚态跃迁辐射同时存在。由于库仑势决定了束缚态能量及其波函数,因此也决定了辐射谱线的形态。接下来,我们将阐述库仑势对阈上谐波和阈下谐波的生成分别会产生怎样的影响。

3.3.3 屏蔽库仑势对高次谐波的影响

接下来，我们探究调节库仑势受屏蔽程度会对高次谐波产生怎样的调制。在图3-4中，我们给出了库仑势屏蔽半径分别为 $r_0=3$ a.u. (红色实线) 和 $r_0=30$ a.u. (黑色虚线) 时的高次谐波谱。激光强度设定为 $I = 5 \times 10^{12}$ W/cm²。在这组计算中，我们特意选取激光的波长值为 3000 nm，因为这样可以便于将束缚态—束缚态跃迁所贡献的谐波与连续态—束缚态跃迁所贡献的谐波区分开来。

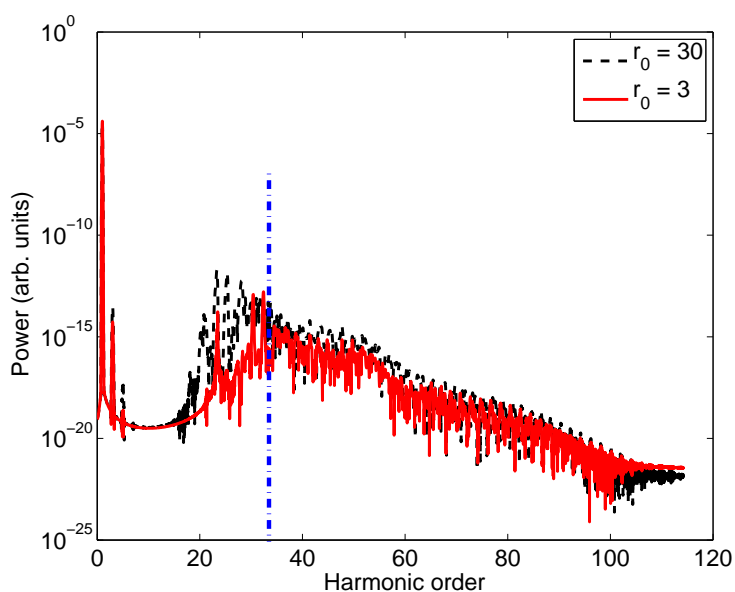


图 3-4 高次谐波频谱，计算所用的激光场参数：波长 3000 nm， $I = 5 \times 10^{12}$ W/cm²， $\tau = 5T_0$ ，线偏振。两条曲线分别对应不同的屏蔽半径 $r_0=3$ (红色实线) 和 $r_0=30$ (黑色虚线)。蓝色竖直点划线标示出了阈值谐波阶次位置。

Fig 3-4 HHG spectra calculated with the laser parameters: wavelength 3000 nm, $I = 5 \times 10^{12}$ W/cm², $\tau = 5T_0$, linearly polarized. The two curves correspond to different screening lengths of $r_0=3$ (red solid line) and $r_0=30$ (black dashed line). The blue vertical dashed-dotted line marks the threshold harmonic.

图3-4中，高次谐波的截止阶次为 65 阶，阈上谐波的最低阶次为 33 阶，蓝色竖直点划线标示了阈值谐波的阶次位置。从图3-4中可以看出，屏蔽半径分别为 $r_0=3$ a.u. 与 $r_0=30$ a.u. 时，生成的阈下谐波强度明显不同，在 r_0 较小时三阶或五阶谐波强度都远小于 r_0 较大时的强度，但两种情况下的阈上谐波强度却相差无几，在 33 阶及更高阶次的谐波能量范围内，红色实线与黑色虚线几乎重合。

这可以由阈下和阈上谐波的生成机理不同来解释：对于阈上谐波来说，电离后的电子运动到远离原子核的区域，在这些区域里库仑势微弱到可以忽略不计，因此屏蔽半径即使有差异也对电子轨道的影响甚微；而对于阈下谐波来说，电子电离后仍在靠近原子核的区域运动，受原子核势影响较强，因此势函数被屏蔽的范围不同，库仑势对电子运动的影响效果也会明显不同。阈下谐波的产生关键就要靠库仑势作用，库仑势作用弱就无法束缚住具有一定动能的电子并使得电子的总能量为负值，因而库仑势作用程越短，阈下谐波的生成效率就越低。考虑极端情况，如果库仑势函数为 δ 型，则无法产生阈下谐波。

两条谐波谱线在谐波阶次为 20 ~ 30 的能量范围里差异最为显著，黑色虚线在这一部分的强度高于红色实线，并且峰的个数也明显更多，这是由激发态能级所导致的。当库仑势的屏蔽半径 r_0 发生改变时，激发态能级的数量和能量也都急剧变化。当 $r_0=3$ a.u. 时，如前所述， $n=2$ 态和 $n=1$ 态之间的能级差 $\Delta E_{1,2}$ 为 0.357 a.u.，红色实线中 23 阶谐波处的峰就对应了这两个能级之间的跃迁辐射。由于 r_0 较小，激发态数目少， E_2 能级附近再无其它激发态，所以也就不存在能量接近 23 阶谐波的其他辐射。相比之下，当 $r_0=30$ a.u. 时，激发态数目和未屏蔽时相比并未减少太多，从这些激发态到基态的跃迁生成了从 20 到 30 阶的一系列阈下谐波，黑色虚线中在该频段的多个峰即反映了这些跃迁过程。

当驱动激光不是线偏振，而是具有较大的椭偏率时，一般认为在原子体系中很难产生高次谐波，这是因为电离后的电子在椭圆偏振的激光场中的运动会有横向漂移，再回到母核位置的概率很小，无法发生重散射。这个推断对于阈上谐波而言是无可争议的共识，也得到了大量实验的验证，但对于阈下谐波来说，情况则有所不同。

图3-5分别给出了驱动激光为线偏振（红色虚线）和椭偏率为 $\epsilon=0.5$ 的椭圆偏振（黑色实线）情况下所生成的高次谐波谱。其中，两者的库仑势屏蔽半径均为 $r_0=5$ a.u.，激光波长和光强和图3-4中一样。正如预期的那样，在椭圆偏振激光场中，阈上谐波的生成被大幅抑制（强度比线偏振情况下低了约 3 到 4 个数量级）。然而对于阈下谐波，椭圆偏振光所生成的三阶和五阶谐波的强度仅稍低于线偏振光情况时的强度，而第 21 到第 33 阶谐波强度更是和线偏振光情况的强度几乎完全一致。

在激光场椭偏率发生改变的情况下，阈上谐波和阈下谐波表现出了不同的响应行为，这正说明了库仑势在其产生过程中起着不同作用。按照半经典模型所述，阈上谐波的生成主要是激光场中远离原子核的电子所贡献，库仑势对这部分电子的会聚作用较弱，因此在高椭偏率激光场中，电子与母核的复合几率大幅下降，阈上谐波的生成会被明显抑制。对于阈下谐波的讨论又可以分为两部分：对于三阶和五阶谐波这样的极低能量的谐波，其生成主要由靠近原子核运动的电子所贡献，在核附近，库仑势对电子的控

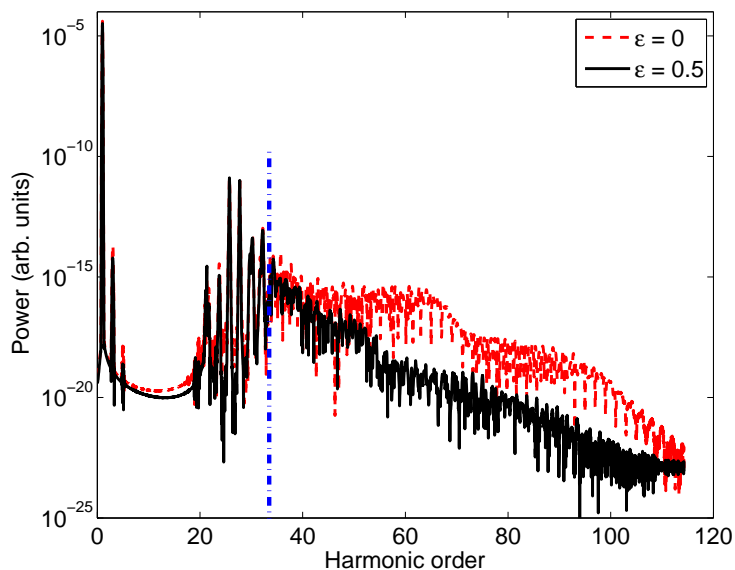


图 3-5 高次谐波频谱，计算所用的激光场参数：波长 3000 nm， $I = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ， $\tau = 5T_0$ ， $r_0=5$ 。两条曲线分别对应不同的激光椭圆偏率 $\epsilon = 0$ （红色虚线）和 $\epsilon = 0.5$ （黑色实线）。蓝色竖直点划线标示出了阈值谐波阶次位置。

Fig 3-5 HHG spectra calculated with the laser parameters: wavelength 3000 nm, $I = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, $\tau = 5T_0$, $r_0=5$. The two curves are calculated with the ellipticity $\epsilon = 0$ (red dashedline) and $\epsilon = 0.5$ (black solid line), respectively. The blue vertical dashed-dotted line marks the threshold harmonic.

制力较强，因此即使激光的椭偏率增加，电子与母核复合几率的减小也不明显，谐波强度只会稍有减弱；对于第 21 到 33 阶这样的中等能量的阈下谐波，其生成主要由束缚态之间的固本征跃迁所贡献，由于线偏振激光和椭圆偏振激光的光强相同，因此将电子波函数从基态泵浦到各激发态的效率也相同，因此激光的椭偏率增加对谐波强度几乎没有影响。

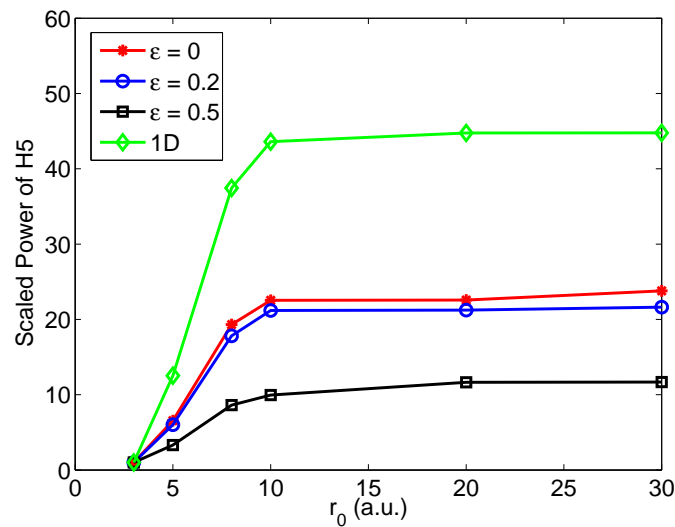


图 3-6 由二维模型计算出的在不同椭偏率的激光脉冲作用下第五阶谐波 (H5) 辐射强度。作为参照，同时展示了一维模型计算结果 (绿色菱形标记线)。所有曲线均以其各自在 $r_0=3$ 处的值为单位做了归一化处理。

Fig 3-6 Intensity of the fifth harmonic (H5) calculated with the 2D model by using laser pulses with different ellipticities. For reference, the 1D simulation result is presented (green line with marker diamonds). All the curves are normalized by their own values at $r_0=3$.

第五阶谐波由连续态—束缚态跃迁产生，电离后的电子距离原子核不远，库仑势仍然对电子有较强的控制力，所以如果逐渐屏蔽库仑势，第五阶谐波的辐射强度将发生相应变化。图3-6给出了五阶谐波强度关于屏蔽半径 r_0 的变化曲线，几条曲线分别对应不同的激光椭偏率。作为参照，我们还给出了求解一维模型含时薛定谔方程，即略去方程 (1) 中 y 变量后的计算结果。所有曲线均以其各自在 $r_0=3$ 处的值为单位做了归一化处理。由图3-6可以看出，所有曲线都有一个共同的趋势特征： r_0 从 3 a.u. 增加到 10 a.u. 的过程中，谐波强度迅速增大，而 r_0 从 10 a.u. 以后继续增加的过程中，谐波强度则保持平稳，几乎不再上升。这说明对阈下谐波的生成起主要作用的电子，其绕原子核运动

的区域主要局限在离核距离 r 小于 10 a.u. 的范围, 而在 $r > 10$ a.u. 区域的库仑势对这部分电子的运动几乎毫无影响。由图3-6中下面三条曲线(红色、蓝色和黑色曲线)可以看出, 在相同的屏蔽半径 r_0 下, 激光椭偏率越大, 五阶谐波强度越低。这是因为随着椭偏率变大, 电子横向偏移效应变得越来越可观, 因此电子与母离子间再度碰撞的概率也会降低 [372, 373]。此外, 由一维模型计算得到的谐波强度(绿色曲线)比所有由二维模型计算得到的谐波强度都更大。这是因为在一维模型中, 电子局限在激光偏振轴的方向上运动, 电子波包不会发生横向扩散, 所以这种情况下电子与母离子复合的概率最大, 谐波的产生率最高。

3.4 本章小结

在本章中, 我们研究了处在强激光场中的氢原子, 发现连续态—束缚态跃迁和束缚态—束缚态跃迁会在阈下谐波频段贡献相同能量的辐射, 这两个量子通道会相互干涉, 从而在高次谐波谱中形成法诺非对称线型。如果对原子核库仑势加以一定程度的屏蔽, 那么在谐波谱中, 由束缚态—束缚态跃迁形成的分立峰会与由连续态—束缚态跃迁形成的谐波峰分开, 导致法诺共振线型消失。此外, 屏蔽库仑势使得原子内的束缚态发生能级移动和数目改变, 同时库仑力的作用程发生变化, 这两者都会对阈下谐波产生明显的调制, 但这对阈上谐波几乎没有影响, 因为阈上谐波的贡献主要来源于远离原子核运动的电子。通常情况下, 增大激光的椭偏率会减弱阈上谐波的产生, 但对阈下谐波的产生影响不大, 因为阈下谐波的贡献主要来源于靠近原子核运动的电子以及束缚态之间的固有所征跃迁。通过研究原子辐射光谱中的法诺共振, 我们可以提取出很多关于束缚态的信息, 例如能级分布和跃迁偶极相位。

我们揭示了法诺共振在单电子体系中也能出现, 这为人们研究法诺现象提供了一个更为广阔的视角。我们揭示了库仑势在阈上谐波和阈下谐波的产生中所起的不同作用, 这将帮助人们对高次谐波产生的内在机理有更深入的理解。

第四章 固体在任意偏振激光场中的电离和高次谐波

4.1 引言

随着非线性光学理论的完善和超短脉冲激光技术的快速发展,人们对强激光场中的电离现象的认识逐步深入,自从发现稀有气体中的高次谐波辐射后的几十年以来 [88, 90],对高次谐波进行了广泛的研究。对于原子和分子体系的电离,人们的理论认知已经从 A. Einstein 提出的基于光量子假说的光电效应理论发展到了今天的多光子电离、隧穿电离、越垒电离等**强场非线性效应理论机制**。高次谐波往往是和隧穿电离联系在一起的。高次谐波的产生过程一般可以用半经典三步模型描述 [94, 374]:首先,电子在激光场中发生隧穿电离,随后在光场中运动,最后返回母核并与之复合,电子的动能和电离能合在一起转化为高次谐波光子。这个模型预言了高次谐波频谱具有平台区的鲜明特征,并且平台区截止能量为 $3.17U_p + I_p$,其中 $U_p = I/4\omega_L^2$ 为有质动力能, I_p 为电离能。这里, I 为激光场强度, ω_L 为激光载波频率。

研究高次谐波的意义,一方面在于用相干谐波合成的阿秒脉冲 [224–226, 228, 231, 327] 能作为一种分辨率空前的时间标尺,为阿秒物理这一科学领域奠定基础 [329, 331, 332, 375, 376],另一方面在于高次谐波谱能有效地反映出作用靶体系的基本结构信息 [181, 377–380]。

在以往的高次谐波研究中,尽管作用靶体系早已从原子拓展到了分子,并且发现了诸多只在分子中特有的效应 [98, 152, 153, 381, 382],但对于固体材料的电离及其高次谐波产生的探究还不够深入,基于高次谐波的复杂凝聚态物质结构诊断技术尚处于起步阶段。

近几年来,人们越来越多地关注高次谐波在固体中的产生,比如纳米材料 [383] 和石墨烯 [384–386]。尽管在更早些年间,人们就已经提出了一些理论来**探究固体高次谐波有哪些不同于原子或分子高次谐波的特有生成机理** [193, 387, 388],但实验观测到固体晶体中的高次谐波也就是最近几年的事。

Ghimire 等人 [190] 利用少周期中红外 (mid-infrared, MIR) 波段激光和块状氧化锌 (ZnO) 晶体相互作用,首次在实验中观测到了非微扰的高次谐波辐射,并且又在后续工作中研究了高次谐波在晶体中的宏观传播效应 [389]。Ghimire 等人的工作引发了人们对于块状晶体中生成高次谐波的兴趣。Kemper 等人通过考虑非平衡态 Kadanoff–Baym–Keldysh 理论框架中的弹性和非弹性散射效应,对固体高次谐波产生过程进行了解析描述 [335]。Vampa 和 McDonald 等人研究了处于高强度中红外激光场中的氧化锌晶体辐

射高次谐波的理论机制 [390], 揭示了能带内电流和能带间电流对高次谐波的贡献, 以及能带间 Bloch 振荡所起的作用 [391]。之后他们还借用气体介质产生高次谐波的方法对固体氧化锌进行了实验 [202], 从方法论上将气体高次谐波和固体高次谐波有机联系在一起。另外, 他们还利用氧化锌晶体在强激光场中产生相干电子-空穴对而后复合辐射高次谐波光子的过程, 将复合时刻的动量 \vec{k} 与能带带隙 ε 进行对应映射, 从而用全光学方法重构出了晶体的能带结构 $\varepsilon(\vec{k})$ [392]。Higuchi 等人将激光看作强静电场, 处于周期性势场中的电子则在这样的静电场下形成 Wannier-Stark 态, 这是从强场的角度来探究能带内电流和能带间电流产生的固体高次谐波 [393]。Schubert 等人以太赫兹波为驱动光场, 在硒化镓 (GaSe) 固体中产生了高次谐波, 并实现了对高次谐波的亚周期调控 [195], 之后又在真实时域观察到了量子干涉效应 [394]。Hawkins 等人模拟了氮化铝 (AlN) 晶体中生成高次谐波的过程, 指出对谐波生成起到至关重要作用的是电子在不同导带之间的跃迁, 这种跃迁行为可以看作是形成了一个等效导带, 等效导带的结构则会反映在高次谐波谱中 [395]。Tamaya 等人提出了一个理论框架来精确描述布洛赫电子的绝热运动过程, 并展示了影响固体在高强度交流电场中生成高次谐波的主要因素是交流 Zener 隧穿 (AC Zener tunneling) 和半导体的半金属化 (semimetallization) [396]。最近, 人们成功地从理论上将固体能带间跃迁和能带内跃迁各自对高次谐波的贡献区分开来, 方法是以 Houston 态为基底函数, 将电子波函数展开, 然后求解一维含时薛定谔方程 [198, 397]。

除了高次谐波之外, 固体的阈上电离 (ATI) 最近也引起了关注。Catoire 和 Bachau 通过理论计算, 展示了固体的阈上电离光电子能谱中截止能量延展的现象 [398], 当激光与一个模拟碘化铯 (CsI) 晶体的一维准周期性结构相互作用时, 其光电子能谱中的截止能量大幅延伸, 远远超过原子体系电离理论预言的 $10U_p$ 能量极限值 [297, 399], 并与之前的实验结果 [400] 符合得较好。

本文将文献 [398] 中的一维模型推广到二维, 研究了二维准周期性结构在近红外激光场中的电离以及高次谐波的产生。大约十年前, Novoselov 和 Geim 等人发现了石墨烯并将其成功分离出来 [401], 从那以后, 以石墨烯为典型代表的二维材料就成为了凝聚态物理领域的备受瞩目的研究热点。在过去的十年中, 关于石墨烯的研究工作数不胜数, 这不仅让人们发现了石墨烯越来越多新奇的物理化学性质和实用价值, 也大大推动了其它各种二维材料合成与分离技术的发展 [402], 这些二维材料包括氮化硼 (BN)、二硒化铌 (NbSe_2)、铋锶钙铜氧系复合材料 ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$)、二硫化钼 (MoS_2) 等等 [403]。

在本章介绍的研究工作中, 我们采用二维 Kronig-Penney 模型来模拟作用靶体系的周期性势场, 数值求解二维含时薛定谔方程 (TDSE)。由于势场具有多中心结构, 因此

电离后的光电子动量分布呈现出复杂的干涉样式。我们也用强场近似 (SFA) 方法计算了电子动量谱, 通过对比求解含时薛定谔方程的结果和强场近似计算结果, 揭示出势场的重要作用。在线偏振激光场的作用下, 相比于原子体系的情况, 准周期性结构辐射的高次谐波谱出现了不止一个平台区, 截止能量也更高。此外, 对于这样的势场结构, 只需要一束圆偏振激光就能触发高阶谐波, 最低几阶奇次谐波的椭圆率和驱动激光脉冲的椭圆率几乎相同, 且旋转方向正反间隔交错, 而高阶谐波的椭圆率则是随时变化的。

4.2 数值模型

对于含时薛定谔方程来说, 固体和原子的最大区别就在于势场的形式, 原子的势场就是一个简单的库仑势, 而要描述固体则必须要模拟大量原子在空间晶格中的周期性排布, 每个原子都带有一个局域的库仑势, 因此需要采用具有空间周期性的势场。1931年由 R. L. Kronig 和 W. G. Penney 提出的一维势场是最早的周期性势场模型, 由无限多个矩形势阱周期排列而成, 这种势场模型被称为 Kronig-Penney 模型 [192]。Kronig-Penney 模型中的电子波函数 $\Psi(x)$ 是可以严格解析求解的, 它应具有 Bloch 函数的形式

$$\Psi(x) = e^{ik \cdot x} u(x), \quad (4-1)$$

其中 $u(x)$ 是具有空间周期性的函数。将上式代入一维定态薛定谔方程, 并利用临界点处的连续性, 即可得到解析的本征态波函数和本征能量。Kronig-Penney 模型势场的不仅有解析解, 而且它的解还表明, 在周期势场中运动的电子可以占据的能级形成能带, 不同能带之间还存在禁带, 很好地符合固体的实际物理性质, 因此具有重要的物理意义。

在本文的研究中, 我们将一维 Kronig-Penney 模型势场推广到二维, 由于是数值模拟, 因此将势阱设定为有限多个, 由于在整个网格空间内不再具备完全的周期性, 因而称为准周期性结构。

在二维模型下, 我们数值求解单电子近似下的含时薛定谔方程 (除特别说明外, 均使用原子单位 a.u.),

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, y, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + V(x, y) + \frac{p_x \cdot A_x(t)}{c} + \frac{p_y \cdot A_y(t)}{c} \right] \Psi(x, y, t), \quad (4-2)$$

其中, x 和 y 是两个空间方向, $\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}/c$ 是速度规范下的哈密顿量相互作用项, $\mathbf{A}(t) = -c \int dt \mathbf{E}(t)$ 是激光矢势, $\mathbf{E}(t)$ 是激光电场。二维势场 $V(x, y)$ 是由 x 和 y 两个方向上各自的一维势场相乘来构建的

$$V(x, y) = -D_0 \cdot \{V(x) \cdot V(y)\}, \quad (4-3)$$

其中的一维势场 $V(x)$ 可以写成

$$V(x) = \begin{cases} 1, & ka - \frac{b}{2} \leq x \leq ka + \frac{b}{2} \quad (a > b) \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (4-4)$$

其中 $k = -(N-1)/2, \dots, -1, 0, 1, \dots, (N-1)/2$, N 是一个奇数, 特别地, 当 $N=1$ 时 $k=0$ 。一维 Kronig-Penney 势场模型的示意可见图4-1, 在该图中取了 $N=5$ 作为示例。

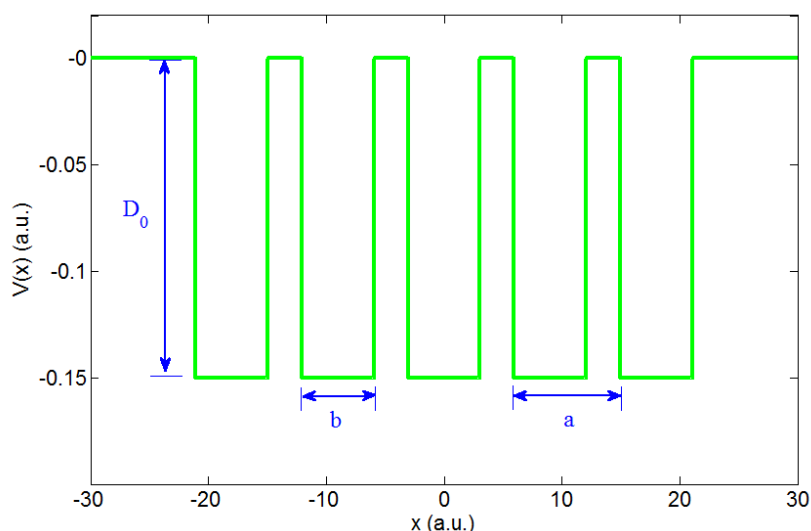


图 4-1 一维 Kronig-Penney 势场示意图。

Fig 4-1 Diagram of the one-dimensional Kronig-Penney potential field.

这种多势阱和单电子近似模型相结合的方式, 简易直观, 是构造周期性势场的常见方法, 被广泛地应用于研究多原子分子 [404]、团簇 [405]、离子链式结构 [387] 等, 特别是在固体物理问题的研究中发挥了很好的作用, 比如 Zener 隧穿电离 [406]、超晶格中的 Bloch 振荡 [407]、超晶格中的 Wannier-Stark 定域化 [408] 等等。

在我们的势场模型中, 势场结构取决于四个参数 a 、 b 、 D_0 和 N , 其中 $a = 8.6$ 是晶体结构的空间周期, $b = 6.45$ 是每个势阱的宽度, $D_0 = 0.15$ 是势阱深度, N 是势阱数目 (注: 此处的 N 是指单个维度上的势阱数目, 在二维平面上总共有 $N \times N$ 个势阱, 下同)。这里我们选取的参数 a 和 b 与文献 [398] 中的一致, 用以模拟碘化铯晶体的能带结构 [409], 而选取的阱深参数 D_0 则要比文献 [398] 中的大得多, 这可以有效地增大体系的电离能, 使其超过我们计算中所用近红外 (near-infrared, NIR) 波段激光的单个光子能量, 这类似于前人的研究工作, 他们所使用的体系电离能也大于他们所用中红外激光的单个光子能量。

我们计算中所采用的势阱数目 N 主要有三种： $N=1$ 、 $N=5$ 以及 $N=11$ ，在这三种情况下，体系的电离能分别为 $I_p=0.0587$ 、 0.0932 和 0.0960 a.u.。当 N 趋于无穷大时，我们所用的势场就变成了文献 [192] 中所描述的严格二维 Kronig-Penney 模型势场。在实际数值模拟中，我们将 N 设为 $N=51$ ，从而求得在 N 趋于无穷大的情况下，体系的电离能是 $I_{p,N \rightarrow \infty}=0.0968$ a.u.。

激光场 $\mathbf{E}(t)$ 可写成

$$\mathbf{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{1+\epsilon^2}} [\cos(\omega_0 t)\hat{\mathbf{x}} + \epsilon \sin(\omega_0 t)\hat{\mathbf{y}}] \sin^2(\pi t/\tau). \quad (4-5)$$

这里， E_0 为电场振幅， ω_0 为中心载波频率， ϵ 为椭偏率， τ 为脉冲宽度， $T_0 = 2\pi/\omega_0$ 为激光的周期。我们用 Crank-Nicholson 方法对电子波函数进行传播，初始波函数为体系的基态，由虚时间演化法求得。计算过程中，取空间步长和时间步长为 $dx = dy = 0.3$ a.u. 和 $dt = 0.3$ a.u.。计算空间涵盖的区域为 $x \in [-1500, 1500]$ ， $y \in [-1500, 1500]$ ，这个网格空间足够大，可以确保被电离的波函数在整个时间演化过程中都不会触碰到网格空间边界。波函数演化传播结果的收敛性已经通过使用更小的空间步长和时间步长得到了验证。利用含时波函数，可以得到 x 和 y 方向的含时偶极力（加速度）分别为

$$f_x(t) = \int \int dx dy |\Psi(x, y, t)|^2 \left[-\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} \right], \quad (4-6)$$

$$f_y(t) = \int \int dx dy |\Psi(x, y, t)|^2 \left[-\frac{\partial V(x, y)}{\partial y} \right]. \quad (4-7)$$

通过傅里叶变换即可得到高次谐波辐射功率谱 $P(\omega)$ 为

$$P_{x,y}(\omega) = \frac{1}{T^2} \left| \int_0^T dt W(t) f_{x,y}(t) e^{-i\omega t} \right|^2, \quad (4-8)$$

其中， T 为总演化时间， $W(t) = \exp[-(t/\sigma)^2]$ 为高斯型窗口函数 [354]，用来消减 $f_{x,y}(t)$ 的起始端和末尾端突变引起的噪声。在我们的计算中， σ 是可调参数，一般根据激光脉冲宽度来设定。

当激光场结束之后，我们将波函数继续传播，直到被电离的波函数与束缚态波函数这两部分彻底分离，然后把处于 $r = \sqrt{x^2 + y^2} < 50$ a.u. 区域内的波函数视为未电离的束缚态部分并将其挖除，之后，我们将剩余部分的波函数投影到末态动量（近似认为是平面波）上，从而求得最后的电子动量分布图谱：

$$\tilde{\Psi}(p_x, p_y) = \frac{1}{2\pi} \int \int dx dy \Psi(x, y, t) e^{-i(p_x \cdot x + p_y \cdot y)}. \quad (4-9)$$

通过对比波函数传播更长的时间后的计算结果，我们验证了电子末态动量分布谱结果是收敛的。

同时，作为参照，我们也用 SFA 理论计算了电子动量分布，即电离之后就不再考虑库仑势场的作用。根据 SFA 理论，从初始基态 $\Psi_0(x, y)$ 跃迁到渐近动量为 \mathbf{p} 的连续态末态的跃迁几率振幅为

$$M(\mathbf{p}) = -i \int dt \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t) | \hat{V}_I | \Psi_0(x, y) \rangle e^{iS_{\mathbf{p}}(t) + iI_p t}, \quad (4-10)$$

其中 $\hat{V}_I = \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A}^2/2$ 代表了速度规范下的激光与体系相互作用势能项， $S_{\mathbf{p}}(t) = \frac{1}{2} \int_0^t [\mathbf{p} + \mathbf{A}(t')]^2 dt'$ 是 Volkov 相位。

4.3 不同偏振状态驱动激光作用下的光电子动量分布和高次谐波

我们分别使用线偏振激光和圆偏振激光和二维模型结构相互作用，考察光电子动量分布以及生成的高次谐波。对于电子动量谱，我们主要关注准周期性势场所带来的特有干涉结构特征，以及势场对于末态动量分布的重要影响。对于高次谐波谱，在线偏振驱动激光下，我们主要关注谐波谱中出现的多平台结构和截止能量的延展，以及各个平台截止能量与阈上电离光电子能谱中多个峰所处能量之间的对应关系；在圆偏振驱动激光下，我们主要关注生成的各阶次谐波的椭圆率，以及其螺旋方向的变化。

4.3.1 光电子动量分布

在图4-2中我们分别展示了初始波函数在位置空间的分布 $|\Psi_0(x, y)|^2$ (左列) 和在动量空间的分布 $|\tilde{\Psi}_0(p_x, p_y)|^2$ (右列)，是没有外加激光场时系统的基态。三行分别代表了不同的系统结构，势阱数目 N 分别为 $N=1$ 、 $N=5$ 和 $N=11$ 。为了使图像核心区域更为清晰可辨，左列的波函数分布图我们只画出了 $x \in [-100, 100]$ ， $y \in [-100, 100]$ 的空间范围，尽管在实际计算中所用的空间网格要大得多。

对于 $N=1$ 的系统，其结果和单原子极限的情形十分相近，这是因为其势场本来就类似于一个氢原子的库仑势场，因此与氢原子电离的电子角分布和波函数的计算结果很类似 [410]。而对于 $N=5$ 或 11 的系统，一方面，其空间波函数分布明显地体现出了晶体势场的空间周期性；另一方面，其动量波函数分布反映出晶体的布里渊区信息，在图4-2(d) 和 1(f) 中，作为晶体结构的倒格子空间，其中最显著的周期性动量间隔 Δp 反映出晶格势场的结构，与晶格常数 a 有倒易关系 $\Delta p = 2\pi/a = 0.73$ 。

在如图4-3所示的电子动量谱中，激光强度设定为 10^{13} W/cm^2 ，而从上至下各排代表了不同的势阱数目 $N=1$ 、 5 、 11 。左右两列分别采用不同偏振形式的激光场，左列三图是沿 x 方向的线偏振光，右列三图是左旋的圆偏振光。激光场中心波长为 800 nm ，脉宽为 4 个光学周期。 $N=1$ 的动量谱中依然呈现出和单个原子情形极其类似的特征，例

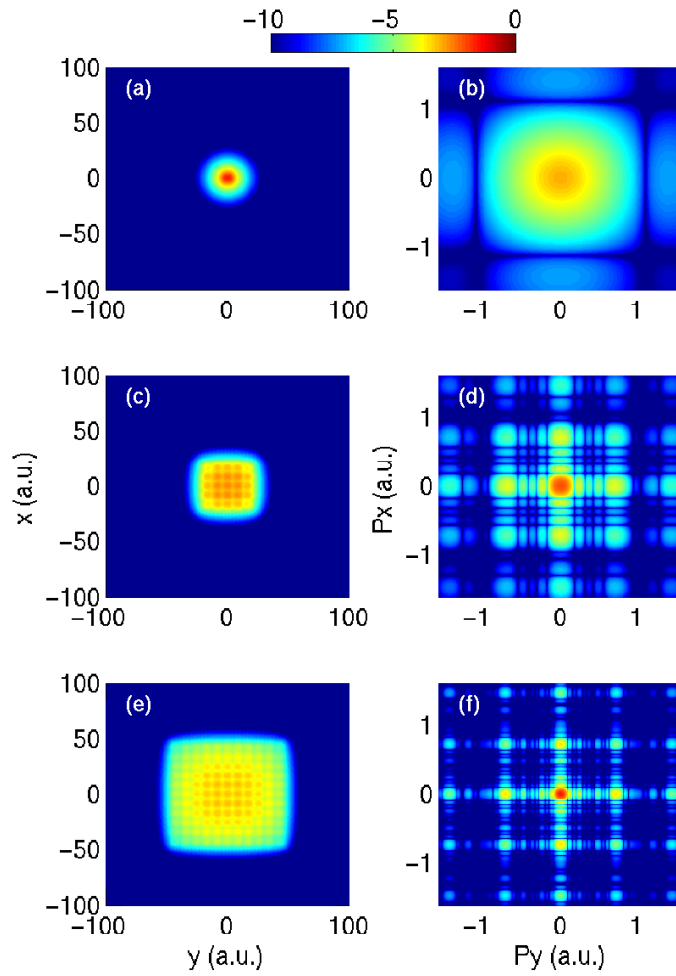


图 4-2 初始波函数在位置空间的分布（左列）和在动量空间的分布（右列）。从上至下各排代表了不同的势阱数目 N ，三排依次为： $N=1$ ， $N=5$ ， $N=11$ 。

Fig 4-2 Initial spatial wave function (left panel) and momentum distribution (right panel). Different well numbers are used, from the top to the bottom row: $N=1$, $N=5$, $N=11$.

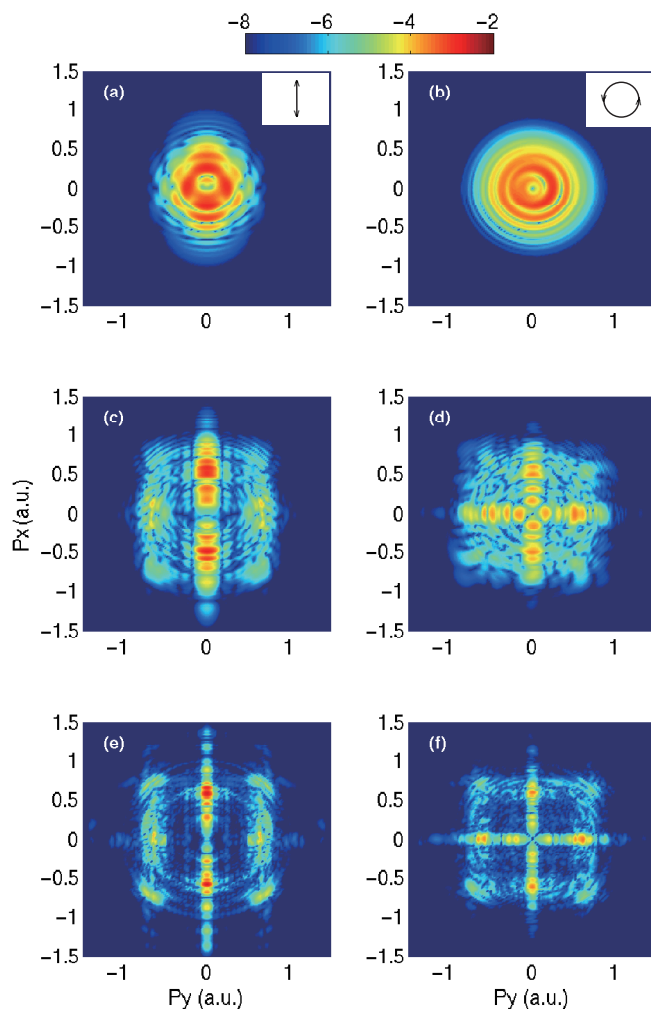


图 4-3 由 TDSE 计算得到的光电子动量分布图谱。激光场参数： $I = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\omega_0 = 0.057$, $\tau = 4T_0$ 。(a) $N=1$, $\epsilon=0$ (b) $N=1$, $\epsilon=1$ (c) $N=5$, $\epsilon=0$ (d) $N=5$, $\epsilon=1$ (e) $N=11$, $\epsilon=0$ (f) $N=11$, $\epsilon=1$ 。内插子图中的黑色箭头是激光场偏振方向的简明示意，左列三图是沿 x 方向的线偏振光，右列三图是左旋的圆偏振光。

Fig 4-3 Photoelectron momentum distributions calculated by TDSE. Laser parameters: $I = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\omega_0 = 0.057$, $\tau = 4T_0$. (a) $N=1$, $\epsilon=0$ (b) $N=1$, $\epsilon=1$ (c) $N=5$, $\epsilon=0$ (d) $N=5$, $\epsilon=1$ (e) $N=11$, $\epsilon=0$ (f) $N=11$, $\epsilon=1$. The black arrows in the insets simply illustrate the laser polarization directions: x -linear polarization for the three panels in the left column and left circular polarization for the three panels in the right column.

如图4-3(a)中典型的角向分布节点结构。图4-3(b)中,圆偏振激光场作用下产生了同心圆环结构,其中强度最大的圆环半径对应的动量约为 $p \approx 0.2 \text{ a.u.}$,这和激光场矢势大小 $A_{0,c} = \frac{1}{\sqrt{2}} E_0 / \omega_0$ 吻合,下标 c 表示激光为圆偏振。 $N=5$ 和 $N=11$ 的动量谱则包含了复杂得多的条纹结构,这种结构是由多中心势场中来自于各个不同中心的电子波包发生干涉所导致的。

当 N 较大时,库仑势场的分布会覆盖更大的空间,因而会对电子动量分布产生更重要的影响。为了考察库仑势的作用,我们也用 SFA 方法计算了电子动量谱。基于 SFA 计算的图4-4结果和基于 TDSE 计算的图4-3结果形成了鲜明的对比。按照预期,当 $N = 1$ 时库仑势的影响很小,这从图4-3(a, b)和图4-4(a, b)的高度相似性可以看出。当 N 变大后,中心势场远不止一个,从一个势场中脱离出来的电子很有可能碰到另一个势场,因此忽略库仑势的 SFA 计算结果就和 TDSE 计算结果大相径庭了,如图4-3(c)-(f)图4-4(c)-(f)所示。

4.3.2 线偏振激光场作用下的高次谐波

除了电离之外,二维 Kronig-Penney 势场也会使高次谐波呈现出一些有趣的性质。图4-5(a)所示的高次谐波谱是由相同的激光参数和不同的势阱数目计算得到,激光光强为 $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$,脉宽 8 个周期,沿着 x 方向线偏振。如图中所标示的,三条曲线对应的 N 分别为 1、5 和 11。当 $N = 1$ 时,谐波谱只有一个平台,截止能量大约在 3 阶处,这符合原子体系的理论预言值 $3.17U_p + I_p$ 。一旦 N 增大,形成了周期性势场,谐波谱就会表现出一些新的特性,谱中出现多个平台,截止能量也变得更高。对于 $N = 5$ 和 $N = 11$ 系统,第一个平台截止能量的位置大约都处于 5 阶附近,这超过了 $3.17U_p + I_p$,大约为 $10U_p + I_p$,而 $10U_p$ 正是原子体系情况下电子所可能获得的最大动能。这可以用半经典物理图象来解释:在周期性势场中,电子从一个势阱中电离出来,在激光场中运动并又返回发生重散射,从而获得了很高的动能,最大可能值为 $10U_p$,而携带着高动能的电子又可能撞到另一个势阱,若与之复合并回到基态,则辐射出的谐波光子能量为 $10U_p + I_p$ 。

除了增加势阱数目以外,增加激光光强也可以使高次谐波谱中出现类似的特性。如图4-5(b)所示,固定 $N = 11$ 的情况下,在较高的激光场强下,谐波谱中出现了更多的平台区。在周期性势场中,电离后的电子可能与其它原子核(势阱)发生重散射,激光光强越高,电子振荡运动幅度越大,也就越可能通过多次重散射获得更大动能,从而出现平台的延展。这个过程也可以从能带角度来理解。与单原子情形不同,周期排列的势阱可以形成能带结构,电子在同一能带内的跃迁可以产生电流,这部分电流形成了位于低能范围的第一平台;而电子在不同能带之间的跃迁产生的电流则会导致位于高能区域

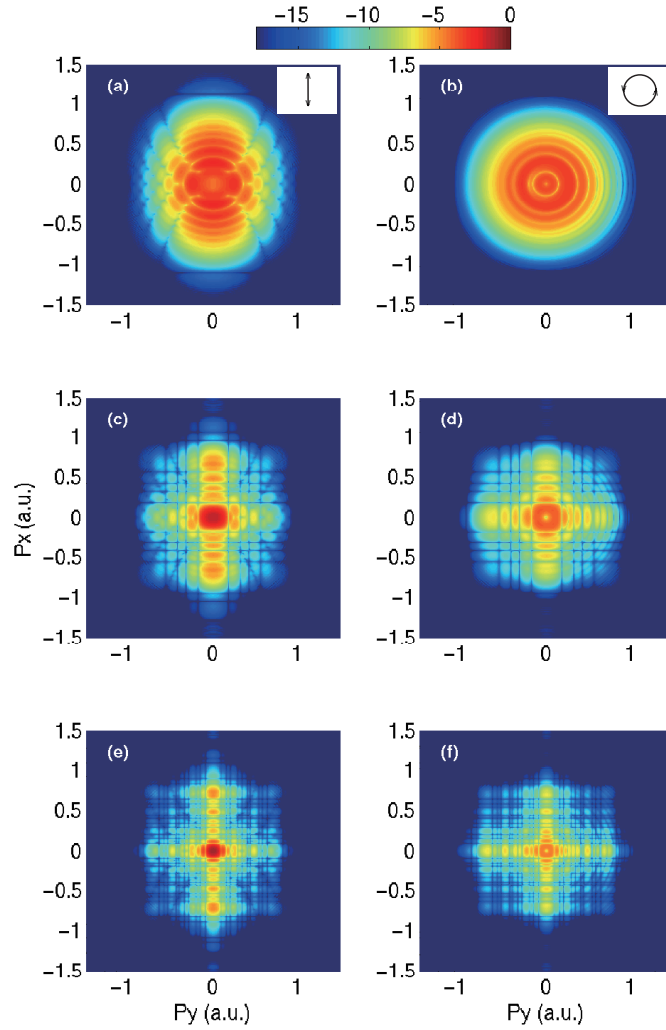


图 4-4 由 SFA 计算得到的光电子动量分布图谱。(a) 到 (f) 图中的激光场参数和势阱数目与图 4-3 中的 (a) 到 (f) 图一一对应，内插图含义也同图 4-3。

Fig 4-4 Photoelectron momentum distributions calculated by SFA. The laser parameters and the well numbers from (a) to (f) have a one-to-one correspondence to those in Fig. 4-3 (a) to (f). The insets have the same meanings as those in Fig. 4-3.

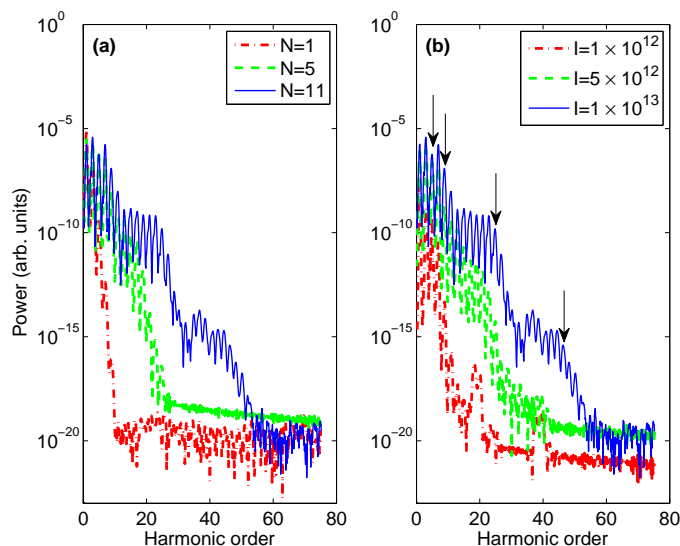


图 4-5 二维模型计算得到的高次谐波谱。(a) 固定的激光场参数： $\omega_0=0.057$, $\tau=8T_0$, $I=1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 不同的势阱数目 N : $N=1$ (红色点划线), $N=5$ (绿色虚线), $N=11$ (蓝色实线)。(b) 固定的势阱数目 $N=11$, 不同的激光光强: $I=1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (红色点划线), $I=5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (绿色虚线), $I=1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (蓝色实线)。在 (b) 图中, 蓝色实线上的四个黑色箭头标示了该谐波谱中四个平台区各自的截止能量位置, 对应的谐波阶次分别为 5、9、25 和 47。

Fig 4-5 HHG spectra calculated in 2D model: (a) fixed laser parameters $\omega_0=0.057$, $\tau=8T_0$, $I=1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, with different N 's: $N=1$ (red dash-dotted line), $N=5$ (green dashed line), $N=11$ (blue solid line). (b) fixed number of potential wells $N=11$, with different laser intensities: $I=1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (red dash-dotted line), $I=5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (green dashed line), $I=1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (blue solid line). The four black arrows in (b) indicate the cutoff energies of the four plateaus appeared in the blue solid line, corresponding to the harmonic orders of 5, 9, 25 and 47, respectively.

的多个次级平台。对于一个具有若干能带的能带结构来说，激光场越强，越有可能驱动电子运动到布里渊区的边缘（即波矢 \mathbf{k} 较大的区域），而在布里渊区边缘的能带间隙一般很小，因此不同能带间的跃迁更容易发生。从图4-5(b) 可以看到，位于 20 阶和 40 阶谐波附近的平台区在三条谱线中都出现了，尽管在激光强度较低时这些平台更弱更窄，但这些出现在相同能量位置的平台反映出了体系的固有能带结构信息。能带结构的作用还可以从反面来看：对于 $N = 1$ 体系而言，假设增加驱动激光强度，也只能使谐波谱中原有的那一个平台截止能量变高，而不会形成多个平台的结构，因为没有周期性势场就不会形成能带结构。在我们的计算中，即使光强逐渐增加到高达 $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，谐波谱也始终只有一个平台，从而验证了上述推断。

按照文献 [398] 中的一维计算，在强激光场作用下，准周期性结构的 ATI 能谱中也会准周期性地出现一系列峰，能谱的计算用的是预解方法 (resolvent method)，具有极高的能量分辨精度，下面以一维情况为例对这个方法作简要介绍，更多细节可参见文献 [411]。预解方法求能谱的起点是由求解 TDSE 得到的末态电子波函数 $|\Psi_f(x)\rangle$ ，计算核心是要得到和能量 E 有关的物理量 $|\Psi_E(x)\rangle$ ，最后的能谱，也即能量的几率密度分布 $\rho(E)$ 可以由 $|\Psi_E(x)\rangle$ 来计算

$$\rho(E) = \frac{\sqrt{2}}{\pi\delta} \langle \Psi_E(x) | \Psi_E(x) \rangle, \quad (4-11)$$

其中 δ 是能谱中的最小能量间隔，代表着能量分辨率。 $|\Psi_E(x)\rangle$ 可以通过把预解算符 \hat{R} 作用到 $|\Psi_f(x)\rangle$ 来得到

$$|\Psi_E(x)\rangle = \hat{R}|\Psi_f(x)\rangle, \quad (4-12)$$

其中 \hat{R} 的表达式为

$$\hat{R} = \frac{\delta}{E - \sqrt{i}\delta - \hat{H}_0} \cdot \frac{\delta}{E + \sqrt{i}\delta - \hat{H}_0}. \quad (4-13)$$

上式中的 \hat{H}_0 表示无外场的体系哈密顿量算符。接下去就是分别求解以下两个方程

$$\begin{aligned} (E + \sqrt{i}\delta - \hat{H}_0)\Psi'(x) &= \delta\Psi_f(x), \\ (E - \sqrt{i}\delta - \hat{H}_0)\Psi_E(x) &= \delta\Psi'(x), \end{aligned} \quad (4-14)$$

其中 $\Psi'(x)$ 是为了计算需要而设的中间过渡量。求解方程 (4-14) 可以使用 Crank-Nicholson 方法，在此不做赘述。

在我们的一维 TDSE 模拟结果中，同样使用预解方法，我们也观察到了 ATI 能谱中的准周期性峰。我们的结果显示，ATI 能谱和高次谐波谱之间存在一定的能量对应关系，这与先前诸多关于 ATI 和高次谐波之间相互联系的理论研究结果吻合 [207, 412]。例如，对于 $N = 11$ 体系，在光强为 $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的条件下（图4-5中的蓝色实线），在 ATI

能谱中出现了几个峰，能量分别为第 3、7、23 和 45 阶谐波，而在高次谐波谱中则有四个截止能量位置，能量分别为第 5、9、25 和 47 阶谐波，如图 4-5(b) 中的四个黑色箭头所标示。在这组对应关系中不难发现，高次谐波谱中的能量都要比 ATI 能谱中对应的能量多出大约 2 个光子的能量，这是由体系的电离能所贡献的。值得一提的是，最大截止能量位于 47 阶谐波处，在我们的激光参数条件下，该能量大约对应于 $124U_p$ ，这和文献 [400] 报道的关于碘化铯晶体的实验结果十分吻合。高次谐波谱和光电子能谱之间的这种对应关系，反映了电子通过多次重散射获取高动能之后，既可能与原子核势阱复合，也可能直接出射，前者导致了高次谐波谱中的多平台结构，后者则导致了光电子能谱中的准周期性多峰形态。

一个有趣之处是，图 4-5 中的两条绿色虚线看起来形状结构很相近，而实际上这两条线对应的参数条件是相差甚远的。从直观上来看，这两条谐波谱的相似性是它们各自对应参数条件下 ATI 能谱的相似性的直接体现。从物理图象上来看，高能区域出现的新平台是与价带和高能导带之间的跃迁密切相关的，而在 $N = 5$ 和 $N = 11$ 这两种体系结构中都可以形成高能导带，并且能带结构也具备一定的相似性，这一点可以从它们的电离能十分接近而推断得出。此外，文献 [398] 中对于电子在能带间的跃迁行为提出了一个所谓“临界光强”的概念，虽然两条绿色虚线对应的激光强度相差较大，但都比临界光强要高得多（在我们的参数条件下，临界光强约为 $1.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ）。基于以上两点，电子在以上两种情形下的跃迁行为可能较为相似，由此导致了两条谐波谱的相似性。

在进入下一节的讨论之前，有两点需要指出。第一，相比于二维模型计算结果，在由一维模型计算得到的 ATI 能谱和高次谐波谱中，延展到高能范围的平台区都更加清晰可辨，形如台阶的结构更加层次分明。这是因为与一维空间不同，二维空间中的电子可以在激光偏振轴以外的方向运动，波函数向各个方向上的扩散会使光电子能谱和高次谐波谱变得相对较为模糊。第二，在图 4-5(a) 和 4-5(b) 中，几条不同谐波谱线在极低频率范围的谐波强度十分接近，看起来好像都经过了归一化，但其实这些都是根据原始数据作图而得的谱线，并未经过任何归一化处理。

4.3.3 圆偏振激光场作用下的谐波椭圆率和螺旋方向

对原子体系而言，增大激光场椭圆率会抑制高次谐波生成，圆偏振激光几乎无法产生高次谐波，因为电离后的电子很可能发生横向漂移而无法回到母核离子的位置 [373]。线偏振驱动激光生成的高次谐波一般也是线偏振的。要得到圆偏振的高次谐波，往往要靠两束反向旋转的圆偏振双色组合激光来驱动，圆偏振高次谐波可以用来合成圆偏振阿秒脉冲 [413, 414]，这在与手性体系有关的超快诊断领域有巨大应用价值 [415, 416]。我们的数值模拟结果表明，对于二维准周期性结构而言，只需要一束圆偏振驱动激光，就

可以有效产生圆偏振高次谐波。Liu 等人最近研究了固体氧化锌在椭圆偏振激光场中产生的高次谐波，着重关注谐波产生率和激光椭圆偏率之间的相关性 [417]。在我们的研究中，我们主要关注的是各阶谐波的椭圆偏率以及螺旋方向。

此处选择的准周期性势场结构是 $N=11$ 体系。驱动激光场是圆偏振的，光强为 10^{13} W/cm²，脉宽 4 个周期。辐射的高次谐波的椭圆偏率 ε 通过如下公式计算 [418]

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{1+r^2-\delta}{1+r^2+\delta}}, \quad (4-15)$$

其中 $\delta = \sqrt{1+2r^2\cos(2\Delta\phi_{x,y})+r^4}$ ， r 是两个方向上谐波强度之比的平方根 $r = \sqrt{P_y(\omega)/P_x(\omega)}$ ， $\Delta\phi_{x,y}$ 是两个方向上谐波相位之差 $\phi_x(\omega) - \phi_y(\omega)$ 。不难看出，这种方法计算出的椭圆偏率恒为非负值，因而无法分辨其螺旋方向。为了同时获知谐波的椭圆偏率和螺旋方向，我们提取了辐射谐波电场的时间轨迹，而不是仅仅观察时间累积谐波信号。我们采用的方法是对两个方向上的偶极力（加速度） $f_x(t)$ 和 $f_y(t)$ 分别进行时频分析 [419]

$$F_{x,y}(t, \omega) = \int \sqrt{\omega} f_{x,y}(t') \widetilde{W}[\omega(t' - t)] dt', \quad (4-16)$$

其中 $\widetilde{W}[\omega(t' - t)]$ 是 Morlet 小波变换

$$\widetilde{W}(X) = \frac{1}{\sqrt{\eta}} e^{iX} e^{-X^2/2\eta^2}. \quad (4-17)$$

小波参数 η 设定为 $\eta=15$ 。然后我们就可以挑出第 n 阶谐波在两个方向上的电场时间演化波形 $E_{nx}(t)$ and $E_{ny}(t)$

$$E_{n,x,y}(t) = \mathbf{Re}\{F_{x,y}(t, n\omega_0)\}. \quad (4-18)$$

最低几阶奇次谐波的电场时间轨迹 $E_{n,x,y}(t)$ 如图4-6所示。与单原子情形明显不同，对于准周期性结构来说，只要单束圆偏振驱动激光就可以辐射出高次谐波。从图4-6(a)-(c)中可以直观地看出，第 3、5、7 阶谐波也是接近圆偏振的，这与根据方程 (4-15) 解析计算椭圆偏率的结果符合得很好。

需要强调的一点是，每一阶谐波都有其各自的有效辐射时间范围。对于基频波（即 $n=1$ ）来说，这个时间范围就是入射激光的脉冲宽度 $0 \sim 4T_0$ ，而对于其它谐波来说，阶次越高，有效辐射时间范围就越短，这一点从我们的时频分析结果可以看出，也和之前的研究结果 [397] 相吻合。比如，此处 13 阶谐波的有效辐射时间大约只是处于 $1.5 \sim 3T_0$ 范围。在图4-6的谐波电场时间轨迹图中，我们特意只画出了各阶谐波有效辐射时间范

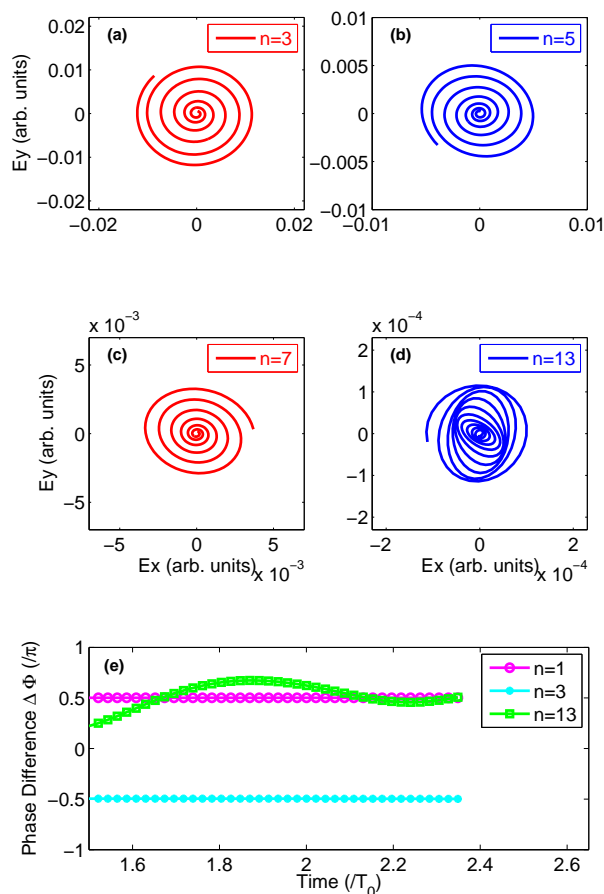


图 4-6 各阶次谐波辐射电场的时域轨迹 E_{nx} 和 E_{ny} 。激光 $I = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\omega_0 = 0.057$, $\tau = 4T_0$; $\epsilon=1$; $N=11$ 。(a) $n=3$ (b) $n=5$ (c) $n=7$ (d) $n=13$ 。(e) 不同阶次谐波各自的双向相位差 $\Delta\phi_{x,y}$ 随时间的变化关系。

Fig 4-6 Time traces of the electric fields E_{nx} and E_{ny} of the radiated harmonics with various harmonic orders. $I = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\omega_0 = 0.057$, $\tau = 4T_0$; $\epsilon=1$; $N=11$. (a) $n=3$ (b) $n=5$ (c) $n=7$ (d) $n=13$. (e) The dependence of $\Delta\phi_{x,y}$ on time for three harmonic orders.

围前一半的轨迹，避免了后一半时间轨迹线条与之发生重叠，这样可以更方便地看清楚圆偏振谐波的螺旋方向。基频波的螺旋方向为逆时针方向，记为 +1，后续的第 3、5、7 阶谐波的螺旋方向则分别为 -1、+1、-1。对于 $n = 1$ 来说， ϕ_y 相对于 ϕ_x 有一个 $\pi/2$ 的延迟，这是由方程 (4-5) 对圆偏振激光场的定义自然决定的。对于 $n = 3$ 的情况，由于角频率变成了原来的 3 倍，因此 ϕ_y 的相对相位延迟也变成了 $3\pi/2$ ，而这就相当于是一个 $\pi/2$ 相位超前，由此螺旋方向与 $n = 1$ 的相反。以此类推，很容易理解 $n = 5, 7, \dots$ 的情形中螺旋方向的间隔交替相反现象。

对于更高阶次的谐波，比如 $n = 13$ ，其辐射电场就不再是圆偏振的了，如图 4-6(d) 所示。实际上，在 13 阶谐波的有效辐射时间范围内，两个方向上的强度之比 r 仍然是接近 1 的，之所以会不再是圆偏振，关键在于两个方向上的相位差 $\Delta\phi_{x,y}$ 。图 4-6(e) 展示了 13 阶谐波在其有效辐射时间范围内的双向相位差 $\Delta\phi_{x,y}$ 随时间的变化关系（绿色空心方块标记线），作为对比，图中同时也展示了两个典型低阶谐波 $n = 1$ （紫红色空心圆标记线）和 $n = 3$ （青色实心圆标记线）的情形。从图中可以看出，最低几阶谐波的双向相位差 $\Delta\phi_{x,y}$ 是相当稳定的，但对处于第一平台区之外的更高阶谐波来说，这种稳定的相位差则很难保持，13 阶谐波的椭圆率一直在随时间不断变化，正是其相位差 $\Delta\phi_{x,y}$ 不稳定的结果。图 4-6(e) 中三条曲线的不同变化趋势可能就是这些谐波的产生动力学过程不同的潜在证据。低阶谐波主要来自于电子在某一能带内的运动，可以长时间保持高度相干性，因此相位差较为稳定。而高阶谐波主要来自于电子在不同能带间的跃迁，在短时间内就可能发生相位失谐，因而相位差不稳定，导致辐射的椭圆率随时变化。

4.4 本章小结

在本章中，我们采用二维 Kronig-Penney 模型势场，研究了固体在近红外激光场中电离产生的光电子动量分布和高次谐波辐射谱。在线偏振激光作用下，增加 N 或者增大光强都可以导致高次谐波谱截止能量延增，还会出现多个平台区，并且和光电子能谱中的平台区具有一定的能量对应关系。在圆偏振激光作用下，由带内跃迁导致的低阶谐波的椭圆率和驱动激光几乎一致，而由带间跃迁导致的高阶谐波的椭圆率则和驱动激光不一定相同，是随时变化的。我们的研究为如何仅用一束椭圆偏振驱动激光来产生椭圆偏振高次谐波这一问题提供了新视角和可能方案。我们的研究揭示了高次谐波谱和光电子动量谱携带二维材料的结构信息，可能会对未来的激光—表面成像技术有所帮助。

第五章 原子在少周期组合激光场中生成的高次谐波

5.1 引言

随着强场物理与超快物理领域理论和超强超短激光脉冲技术的发展, 自从 McPherson 等人首次在实验上观测到稀有气体中的高次谐波辐射后的三十年以来 [88], 人们对强场激光与物质相互作用生成高次谐波这一物理现象开展了广泛的研究, 并提出了三步模型、Lewenstein 模型、干涉模型等理论模型来阐释高次谐波的产生机制 (这些模型的详细介绍可参见第一章相关小节)。

随着高次谐波生成理论的完善和实验技术的成熟, 这方面的研究主要可分为两个发展方向: 一个方向是作用靶体系的复杂化, 即从原子气体到分子气体再到固体; 另一个方向是激光场的多样化, 即从单束的激光变为两束乃至多束激光的组合, 通过调节各激光场之间的频率之比、强度之比、相对相位等参数, 大大丰富了研究的多样性。

双色激光场的组合在强场物理和超快物理领域被广泛地应用, 如用于研究原子电离中的库仑势效应 [420]、非时序双电离中的电子关联 [421, 422]、控制分子解离过程中的电子位置 [423]、探测电子亚周期动力学中的非绝热效应 [424]、控制电离电子波包的干涉 [425, 426] 等等, 当然, 双色场也在高次谐波的研究中大展身手。

双色激光场一个广为应用的功能是可以提升高次谐波的辐射强度。相比于只用一束激光的情形, 叠加另一束光会使谐波强度明显提升, 即使第二束光的光强相对较弱。最常见的双色场组合方式是一束基频光 (通常是 800 nm 波长的激光) 加上它的二倍频光, 即 $\omega + 2\omega$ 组合, 既可以是线偏振场 [107, 427, 428] 也可以是椭圆偏振场 [338, 429]。当然, 也有叠加的第二束光与第一束光不是频率倍数关系的情况, 叠加光场的频率可以比第一束光更小, 如使用 MIR 光 [108], 叠加光场的频率也可以比第一束光更大, 如 XUV 光 [109, 430]。双色场另一个较为熟知的用途是拓展高次谐波谱的频带宽度, 获得更高的截止能量 [431, 432]。

双色场还可以用来控制电子的量子轨迹, 操控谐波的时频特性, 这能用于探测靶原子轨道波函数的对称性 [433], 这还有助于实现选择性地对特定谐波频段甚至单一阶次谐波进行增强 [272, 434], 也会有利于合成单个阿秒脉冲 [337, 435, 436], 此外双色场还有助于消除阿秒啁啾 [437, 438], 能使高次谐波合成阿秒脉冲的脉宽逼近傅里叶极限, 有效缩短脉宽。

另外, 双色场相对于单色场的一大独特性质是可以生成偶次谐波。在第一章相关小节中我们已经推导论证, 对于势场具有对称性的作用靶体系来说, 在单束激光的辐照

下,通常只能生成奇次谐波,而两束激光的组合场则可以通过调节光强、频率等参数来轻易地打破激光脉冲在时间维度的对称性,因此偶次谐波不会干涉相消,一般情况下各整数阶次的谐波都可以辐射出来。使用双色场产生偶次谐波的实验可以追溯到上世纪九十年代初期, **Perry** 和 **Crane** 用线偏振的 1053 nm 光(光强很弱)及其倍频光(光强很强)与氦气进行作用,他们试验了平行偏振和垂直偏振两种情况,都成功观测到了明显的偶次谐波(针对倍频光而言) [439]。2005 年, **Kim** 等人用垂直偏振的双色线偏振场和氦原子作用观测到了偶次谐波 [107],他们发现偶次谐波的强度比平行双色场的情形 [440] 要强得多。2006 年, **Dudovich** 等人用双色场与氦气作用产生高次谐波,通过探测偶次谐波强度随着双色场之间时间延迟的调制,成功提取了阿秒脉冲的脉宽信息,从而开创性地将阿秒脉冲的产生和测量有机整合在一起 [441]。2009 年, **Shafir** 等人利用奇次谐波和偶次谐波的不同偏振方向,根据测量得到的奇偶次谐波辐射强度之比来判断电子与母核的回碰角度,从而重构出了不同惰性气体原子的轨道波函数 [433]。最近,双色场产生偶次谐波的实验也推广到了固体材料,如 **Vampa** 等人就用双色场与氧化锌晶体作用,根据偶次谐波强度随双色场时间延迟周期性调制中的相位来探究固体高次谐波的不同产生机理 [202]。

近几年来,双色激光场还被用来挑选电子长短轨道。虽然前不久 **Lan** 等人提出利用高次谐波传播过程中长短轨道的相位匹配条件不同来区分它们的贡献 [442],但通过调节双色场之间的相对相位来实现轨道调控在实验上操作简便,因此仍是实验和理论研究中最常见的方法,例如: **Brugnera** 等人用垂直偏振双色场与氦原子相互作用,得以有效控制长轨道和短轨道对高次谐波贡献的相对大小 [443], **Hutchison** 等人发现双色场对电子长轨道和对短轨道的调制两者之间存在一个相位偏移,并且偏移量对相邻的奇次谐波和偶次谐波是不同的 [444]。

当然,除了线偏振的双色场以外,椭圆偏振的双色场也在高次谐波研究中得到了广泛的应用,在第四章中我们也已经提到过,采用这种双色场可以有效地生成椭圆偏振的高次谐波,并由此来合成椭圆偏振的阿秒脉冲,在此不做赘述。

本章的研究工作主要聚焦于组合激光场中原子辐射的高次谐波的偏振状态。在激光场对称性被打破的条件下,奇次谐波和偶次谐波都将出现。大多数以前使用双色激光场的研究工作使用的都是多周期脉冲,而我们这里的计算则采用少周期脉冲,我们发现,在少周期驱动光脉冲的作用下,无论是奇次还是偶次谐波,其偏振方向都不会像多周期情形那样简单地沿着两束驱动光的偏振方向,而是有特定的偏振角度分布,并且偏振角度分布会明显地随着谐波阶次的变化而发生改变。少周期脉冲可以有效地挑选和控制生成高次谐波的电子量子轨道 [445],而高次谐波的偏振角度分布性质也是不同电子轨道贡献的体现。我们使用双色垂直线偏振激光、双色圆偏振激光以及三束激光场组合分别

进行了数值模拟，通过调节激光光强之比、相对相位等参数，我们探究了这些参数对高次谐波偏振角度分布的影响。

5.2 数值方法

为研究高次谐波辐射及其偏振状态，我们数值求解二维薛定谔方程（除特别说明外，均使用原子单位 a.u.）

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, y, t) = \left[-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + V(x, y) + x \cdot E_x(t) + y \cdot E_y(t) \right] \Psi(x, y, t). \quad (5-1)$$

激光电场 $\mathbf{E}(t)$ 可以写为

$$\mathbf{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} [\cos(\omega_0 t) \hat{\mathbf{x}} + \epsilon \sin(\omega_0 t) \hat{\mathbf{y}}] F(t). \quad (5-2)$$

这里， E_0 为电场振幅， ω_0 为中心载波频率， ϵ 为椭圆率， τ 为脉冲宽度， $T_0 = 2\pi/\omega_0$ 为激光的周期。 $F(t)$ 为高斯型脉冲包络函数

$$F(t) = \exp[-2 \ln 2 (t/\tau)^2]. \quad (5-3)$$

我们用虚时间演化法求得原子的基态波函数，并用 Crank-Nicholson 方法对电子波函数进行传播。计算过程中，取空间步长 $dx = dy = 0.3$ a.u.，时间步长 $dt = 0.2$ a.u.。我们的计算网格空间两个方向的跨度分别为 $x \in [-120, 120]$ ， $y \in [-120, 120]$ ，边界衰减函数为 $\cos^{1/8}$ 形式。

利用含时波函数 $\Psi(x, y, t)$ ，我们可以分别写出 x 和 y 方向的偶极矩 $d_x(t)$ 和 $d_y(t)$ ：

$$d_x(t) = \left\langle \Psi(x, y, t) \left| -\frac{\partial V(x, y)}{\partial x} \right| \Psi(x, y, t) \right\rangle, \quad (5-4)$$

$$d_y(t) = \left\langle \Psi(x, y, t) \left| -\frac{\partial V(x, y)}{\partial y} \right| \Psi(x, y, t) \right\rangle. \quad (5-5)$$

为了得到沿着任意方向偏振的高次谐波辐射，我们定义 θ 为该方向矢量与 x 正方向的夹角，在该方向的偶极矩记为 $d_\theta(t)$ ，可由下式来计算：

$$d_\theta(t) = d_x(t) \cos \theta + d_y(t) \sin \theta. \quad (5-6)$$

由此得到在该方向的高次谐波辐射强度 $P_\theta(\omega)$ 为

$$P_\theta(\omega) = \frac{1}{T^2} \left| \int_0^T dt W(t) d_\theta(t) e^{-i\omega t} \right|^2, \quad (5-7)$$

其中, T 为总演化时间, $W(t) = \exp[-(t/\sigma)^2]$ 为高斯型窗口函数, 用来消减时域偶极矩的起始端和末尾端突变引起的噪声。在我们的计算中, σ 是可调参数, 一般根据激光脉冲宽度来设定。

5.3 原子在组合激光场作用下生成高次谐波的偏振性质

本节将分别介绍原子在三种不同组合激光场条件下辐射高次谐波的偏振状态, 我们的数值计算包括: 双色垂直线偏振激光 (800 nm+1600 nm)、双色圆偏振激光 (800 nm+1600 nm) 以及三束激光场 (800 nm+800 nm+400 nm) 的组合, 作用靶体系包括氢原子和氦原子。我们重点关注各个阶次谐波的偏振角度, 并探究激光参数对谐波偏振角度分布的影响。

5.3.1 氢原子在双色垂直线偏振激光场中的高次谐波辐射

我们首先计算了氢原子在双色垂直线偏振激光场中的高次谐波, 双色场分别是沿着 x 方向偏振的 800 nm 光和沿着 y 方向偏振的 1600 nm 光。根据方程 (5-2), 这里的组合激光场可写为

$$\mathbf{E}(t) = E_0 [\cos(\omega_0 t)\hat{\mathbf{x}} + k \cos(0.5\omega_0 t + \phi)\hat{\mathbf{y}}] F(t), \quad (5-8)$$

其中 $\omega_0 = 0.057$ a.u., 脉宽 $\tau = 3T_0$, $T_0 \approx 2.67$ fs 是 800 nm 激光的光学周期 (在下文中, 所有 T_0 均是指 800 nm 光的周期, 不再做特别说明, 另外, 在本文的计算中, 组合激光场中的每个光脉冲始终都具有相等脉宽), k 代表 1600 nm 光与 800 nm 光的电场峰值场强之比, ϕ 是 1600 nm 光的载波包络相位 (CEP)。

图5-1展示了计算得到的氢原子高次谐波辐射谱的偏振角分布, 图中的谐波阶次均是基于 800 nm 光而言。这里的 800 nm 光光强为 $I = 1 \times 10^{14}$ W/cm², 并且 $k = 1$, 这一点与很多以前的研究工作不同, 在那些研究中, 倍频光往往光强远远小于基频光, 只是作为打破激光场对称性的微扰外场。从图5-1(a)中可以看到, 高次谐波辐射是线偏振的, 并且其偏振角度明显地随着谐波阶次而改变, 蓝色虚线清晰地描绘了各阶谐波的偏振最强角度 θ (考虑对称性, 易知 $\theta + \pi$ 也是偏振最强角度), 该角度随着谐波阶次的变化幅度最大可以高达将近 30° (如 30 阶和 42 阶谐波的偏振角度相差约 0.16π)。这些谐波不同的偏振角度反映出不同的电子轨道, 亦即电子回撞母核不同的角度, 先前的理论研究表明, 调节双色激光场之间的相对相位, 可以调控电子轨道 [446], 因此也会影响电子的回碰角度。在我们的计算中, 双色场相对相位即为 (5-8) 式中的 ϕ , 比较图5-1(a) 和 (b) 不难看出, 当我们把 ϕ 从 0 变为 0.5π 后, 虽然偏振角度仍然是依赖阶次而改变, 但对每一阶谐波而言, 具体的偏振角度已经和原来不同, 反映出调节相对相位确实改变了

电子的回碰角度。

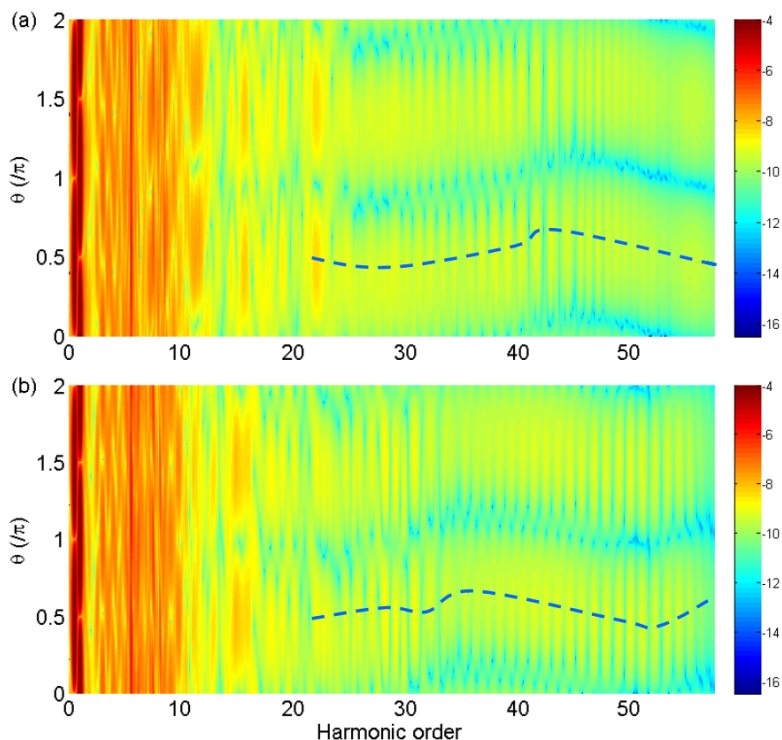


图 5-1 氢原子在双色垂直线偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布。驱动光为沿着 x 方向偏振的 800 nm 光与沿着 y 方向偏振的 1600 nm 光的组合，光强均为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，脉宽均为 $\tau = 3T_0$ ，800 nm 光相位为 0。(a) 1600 nm 光相位为 0。(b) 1600 nm 光相位为 0.5π 。

Fig 5-1 The polarization angle distribution of the HHG spectra from a hydrogen atom radiated by the two-color orthogonally polarized laser fields. The driving laser field is the combination of a x -polarized 800 nm laser and a y -polarized 1600 nm laser field, each with an intensity $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and a pulse duration $\tau = 3T_0$, the CEP of the 800 nm pulse is 0 and the CEP of the 1600 nm pulse is 0 in (a) and 0.5π in (b).

另外，不管是在图5-1(a) 还是 (b) 中，偏振角度随阶次改变的这种性质在高能部分都可以观察得很清晰，但在低能部分则都显得有些杂乱模糊，这是因为在能量低于 9 阶谐波的部分属于阈下谐波，生成机制与一般的阈上谐波不同，另外在低能部分，除了谐波辐射之外，还充斥着一些束缚态之间的跃迁辐射，这种跃迁辐射的偏振角度是几乎不受激光偏振方向影响的，最明显的例如在 5.5 阶谐波能量附近的一条竖直红色亮线，该处能量由两部分组成，一是对应着 1600 nm 驱动光的 11 阶谐波辐射，二是对应着氢原子第一激发态和基态之间的跃迁辐射，因此在该能量处的偏振角度是遍布 $0 \sim 2\pi$ 的，

但在 0.5π 和 1.5π 处略微稍强 (1600 nm 驱动光偏振方向)。

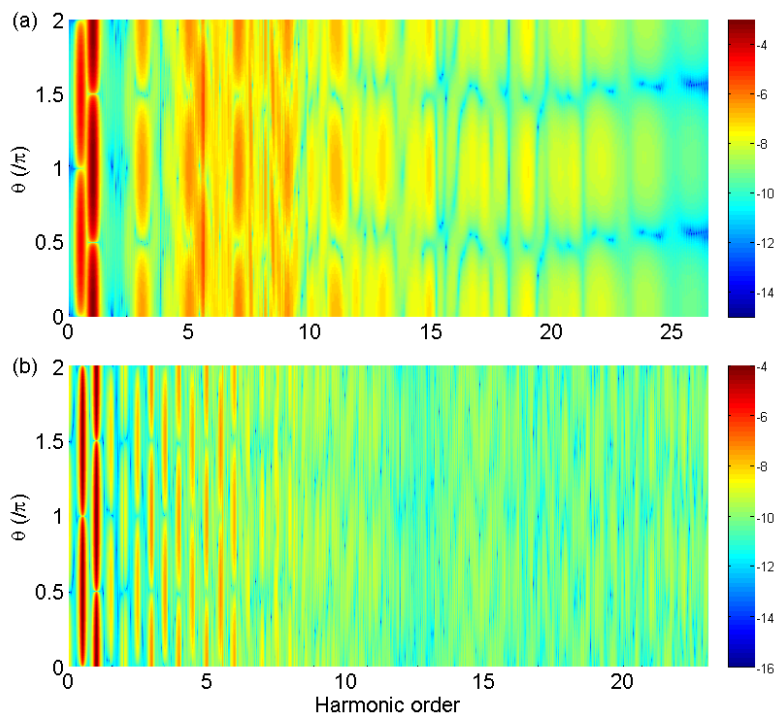


图 5-2 氢原子在双色垂直线偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布。驱动光为沿着 x 方向偏振的 800 nm 光与沿着 y 方向偏振的 1600 nm 光的组合，两束光相位均为 0。(a) 两束光脉宽均为 $\tau = 3T_0$ ，800 nm 光强为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，1600 nm 光强为 $I = 4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 。

(b) 两束光脉宽均为 $\tau = 15T_0$ ，光强均为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 。

Fig 5-2 The polarization angle distribution of the HHG spectra from a hydrogen atom radiated by the two-color orthogonally polarized laser fields. The driving laser field is the combination of a x -polarized 800 nm laser and a y -polarized 1600 nm laser field, each with CEP=0. (a) The pulse duration is $\tau = 3T_0$ for each pulse, the intensity of the 800 nm light is $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and the intensity of the 1600 nm pulse is $I = 4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. (b) The pulse duration is $\tau = 15T_0$ for each pulse, the intensity of each pulse is $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

现在我们将继续讨论阈上谐波的偏振性质。要形成这种偏振角度随着阶次变化的状态，有两个必要的激光场因素：第一是双色组合场，第二是少周期脉冲。第一个因素很容易理解，因为当只有一束线偏振激光时，电子与母核的回碰也必然是沿着激光偏振方向，所以高次谐波辐射的偏振角度也是该方向。事实上，我们的计算表明，即使是双色驱动光场，如果其中一束光相对于另一束光而言很弱，那么高次谐波辐射的偏振角度也

基本上是只沿着较强那束光的偏振方向,如图5-2(a)所示,在该图中,我们把1600 nm光的光强减弱到仅为800 nm光光强的4%,从图中也容易观察到,各阶次谐波的偏振方向角都是在0和 π ,也就是800 nm驱动光的偏振方向。第二个因素是基于激光场对称性分析做出的论断。以垂直线偏振的 $\omega + 2\omega$ 组合光为例,如果双色激光都是多周期脉冲,那么激光场对称性较好,相邻的两个激光半周期内导致的电离事件之间存在干涉相消效应,这会导致奇次谐波的偏振都是沿着基频光的偏振方向,而所有偶次谐波的偏振都是沿着倍频光的偏振方向[433]。图5-2(b)中,我们把1600 nm光的光强恢复到与800 nm光一致,但是将激光脉宽增大至 $\tau = 15T_0$,可以看到,1600 nm驱动光的奇次谐波和偶次谐波(对应于图中的半整数阶次和整数阶次)的偏振方向分别是 y 轴方向和 x 方向,与文献[433]中的理论预言吻合得很好。另外,由于脉宽变长,光子的单色性变好,因此谐波谱的谱线也变得更细窄而清晰可辨。

在少周期脉冲的作用下,激光脉冲由于包络形状的存在而不具有太好的对称性,并且电子与母核的回碰事件只发生很少的次数,因此不会有多次平均抵消效果,从而导致高次谐波的偏振方向可能沿着各个角度,并且角度随着阶次的变化而改变,这可以用来挑选出单一频率的谐波。这种偏振性质可以类比阿秒灯塔效应[447, 448],亦即通过波前旋转的方法,使阿秒脉冲链中不同的单个脉冲沿着不同方向传播,由此在空间上将每个脉冲分开而获得单个阿秒脉冲。在我们的情形中,不同能量的高次谐波也可以通过偏振方向在空间上分开,从而获得单一能量的谐波光子辐射。

5.3.2 氢原子在双色圆偏振激光场中的高次谐波辐射

现在我们讨论双色圆偏振激光组合场的情形,这里仍为800 nm和1600 nm光的组合,分别是左旋圆偏振光和右旋圆偏振光,激光电场 $E(t)$ 可写为

$$E(t) = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \{ [\cos(\omega_0 t) \hat{\mathbf{x}} + \sin(\omega_0 t) \hat{\mathbf{y}}] + \sqrt{k_I} [\cos(0.5\omega_0 t + \phi) \hat{\mathbf{x}} - \sin(0.5\omega_0 t + \phi) \hat{\mathbf{y}}] \} F(t), \quad (5-9)$$

其中 $\omega_0 = 0.057$ a.u., 脉宽 $\tau = 3T_0$, k_I 为1600 nm光与800 nm光的光强之比, $\sqrt{k_I}$ 即为峰值电场场强之比。

一般而言,单束圆偏振激光与原子相互作用无法有效产生高次谐波,但在双色反向旋转圆偏振组合激光场中,电子在组合场作用下仍有相当概率可以与母核发生回碰,因此可以生成高次谐波。虽然原子在圆偏振驱动光作用下,辐射的高次谐波光子不再是线偏振而是椭圆偏振的,但依然可以通过辐射最强的方向(亦即椭圆长轴方向)来类似地定义偏振方向角度。

与线偏振情形相似,调节双色圆偏振场的相对相位也可以调控电子轨道,从而影响谐波的偏振角度。图5-3(a)-(c)展示了氢原子在双色圆偏振光场作用下的高次谐波偏振

角度分布, 800 nm 光的光强为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 且 $k_I = 1$ 。在图5-3中, 我们用更为形象直观的方式展现偏振方向, 其中径向表示谐波阶次 (这里高次谐波阶次仍是针对 800 nm 光而言, 半径越大表示阶次越高), 而角向则就是直接代表偏振角度。在图 (a)-(c) 中, 我们调节 1600 nm 驱动光的 CEP, 分别为 0、 0.2π 和 0.4π 。可以清楚地看到, 随着双色激光场相对相位的变化, 各阶次谐波的偏振方向也随之而改变。为便于观察, 我们用紫红色虚线标出了 31 阶谐波的偏振角度, 不难发现, 每当 1600 nm 光的相位增加 0.2π , 该角度就顺时针旋转大约 $24^\circ(2\pi/15)$ 。这个高次谐波偏振角度的旋转与激光电场是紧密关联的, 事实上, 根据 Odžak 和 Milošević 的理论研究结果 [449], 在我们的激光参数条件下, 当 1600 nm 光的相位增加 ϕ , 组合激光电场的方向就会旋转 $-2\phi/3$ (负号代表顺时针旋转), 因此相位增加 0.2π 正是对应于三叶草形的电场旋转 $-2\pi/15$, 在图5-3(d) 中我们分别画出了 $\phi = 0$ 和 $\phi = 0.2\pi$ 情况下组合激光电场的利萨如图形 E_x-E_y , 清晰地展示了这种旋转效应。

高次谐波的偏振角度是电子与母核回碰角度的体现, 而电子轨道又会受到激光场的调控, 因此, 谐波偏振角度的改变不一定要靠激光电场的旋转来实现。在图5-4中, 我们固定 1600 nm 驱动光的相位 $\phi = 0$, 而只改变两束光的光强之比 k_I , 图5-4(a)-(c) 是高次谐波偏振角度分布, 分别对应着 $k_I = 0.5$ 、 $k_I = 1$ 和 $k_I = 2$, 紫红色虚线标出了 31 阶谐波的偏振角度, 图 (d)-(f) 分别是相应的激光电场利萨如图形 E_x-E_y 。不难发现, 改变光强之比并不会像改变相对相位那样使激光电场发生旋转, 激光峰值场强对应的“叶瓣”在三种参数下都位于固定的方向, 然而, 正如我们的预期, 高次谐波的偏振角度还是会相应地受到调制, 先前的理论研究结果表明, 改变垂直线偏振双色场的光强之比会改变电子波包的产生和回碰的角度 [446], 而我们的计算结果揭示了在圆偏振情形下这一点仍然成立。

5.3.3 氦原子在三束线偏振激光场中的高次谐波辐射

现在我们回到线偏振情形, 但采用三束激光脉冲的组合, 在 x 方向是一束 800 nm 基频光, 而在 y 方向则是一束 800 nm 基频光与一束 400 nm 倍频光的叠加场。激光电场可写为

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \{ \cos(\omega_0 t) \hat{\mathbf{x}} + [\cos(\omega_0 t) + k \cos(2\omega_0 t + \phi)] \hat{\mathbf{y}} \} F(t). \quad (5-10)$$

这里, $\omega_0 = 0.057 \text{ a.u.}$, k 代表 y 方向 400 nm 光与 800 nm 光的电场峰值场强之比, ϕ 是 400 nm 光的 CEP。在这组计算中, 800 nm 光的光强为 $I=5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $k = 0.2$, 脉宽为 $\tau = 3T_0$ 。由于光强较大, 我们这里选用电离能较大的氦原子为作用靶, 以避免电离耗尽效应的发生。

图5-5展示了氦原子在三束激光场作用下的高次谐波辐射偏振角度分布, 此处 400

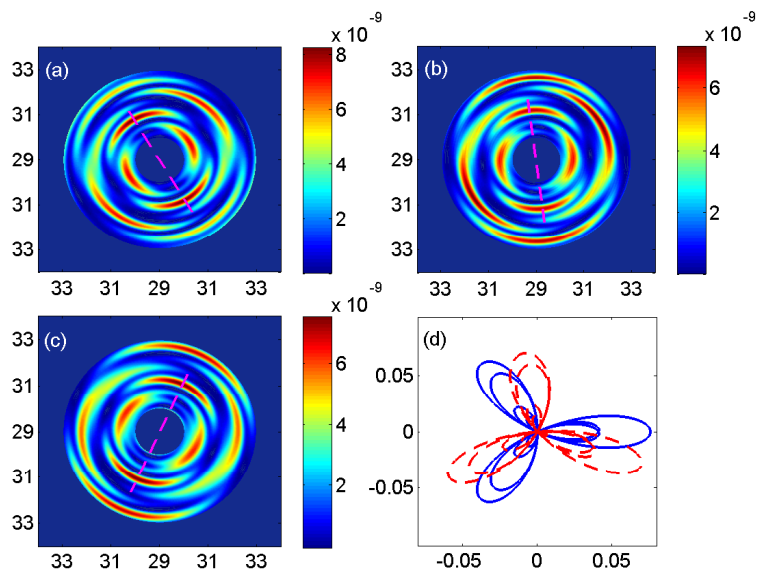


图 5-3 (a)-(c) 氢原子在双色圆偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布，其中径向表示谐波阶次。驱动光为左旋圆偏振的 800 nm 光与右旋圆偏振的 1600 nm 光的组合，两束光脉宽均为 $\tau = 3T_0$ ，光强均为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，800 nm 光相位为 0。(a) 1600 nm 光相位为 0。(b) 1600 nm 光相位为 0.2π 。(c) 1600 nm 光相位为 0.4π 。(d) 组合激光电场在偏振平面的利萨茹图形 $E_x - E_y$ ，分别是图 (a)(蓝色实线) 和图 (b)(红色虚线) 的情形。

Fig 5-3 (a)-(c) The polarization angle distribution of the HHG spectra from a hydrogen atom radiated by the bichromatic circularly polarized laser fields, with the radial direction represents the harmonic order. The driving laser field is the combination of a left circularly-polarized 800 nm laser and a right circularly polarized 1600 nm laser field, the duration of each pulse is $\tau = 3T_0$, the intensity of each is $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, the CEP of the 800 nm pulse is 0. (a) The CEP of the 1600 nm pulse is 0. (b) The CEP of the 1600 nm pulse is 0.2π . (c) The CEP of the 1600 nm pulse is 0.4π . (d) The Lissajous figures of the combined laser electric fields $E_x - E_y$ in the polarization plane for the parameters in (a) (blue solid line) and (b) (red dashed line), respectively.

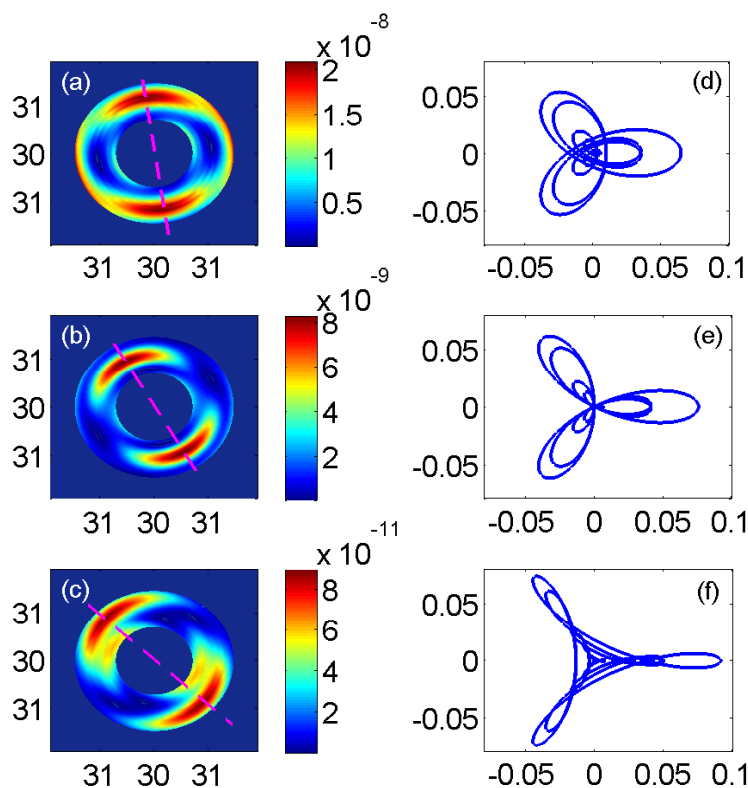


图 5-4 (a)-(c) 氢原子在双色圆偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布，其中径向表示谐波阶次。驱动光为左旋圆偏振的 800 nm 光与右旋圆偏振的 1600 nm 光的组合，两束光脉宽均为 $\tau = 3T_0$ ，两束光相位均为 0，800 nm 光强为 $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ，1600 nm 光光强与 800 nm 光光强之比为 k_I 。(a) $k_I = 0.5$ 。(b) $k_I = 1$ 。(c) $k_I = 2$ 。(d)-(f) 组合激光电场在偏振平面的利萨茹图形 E_x-E_y ，分别对应图 (a)-(c)。

Fig 5-4 (a)-(c) The polarization angle distribution of the HHG spectra from a hydrogen atom radiated by the bichromatic circularly polarized laser fields, with the radial direction represents the harmonic order. The driving laser field is the combination of a left circularly-polarized 800 nm laser and a right circularly polarized 1600 nm laser field, the duration of each pulse is $\tau = 3T_0$, the CEP of each pulse is 0, the intensity of the 800 nm light is $I = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, and the ratio of the intensity of 1600 nm light relative to that of the 800 nm light is denoted as k_I . (a) $k_I = 0.5$. (b) $k_I = 1$. (c) $k_I = 2$. (d)-(f) The Lissajous figures of the combined laser electric fields E_x-E_y in the polarization plane corresponding to the parameters in (a)-(c), respectively.

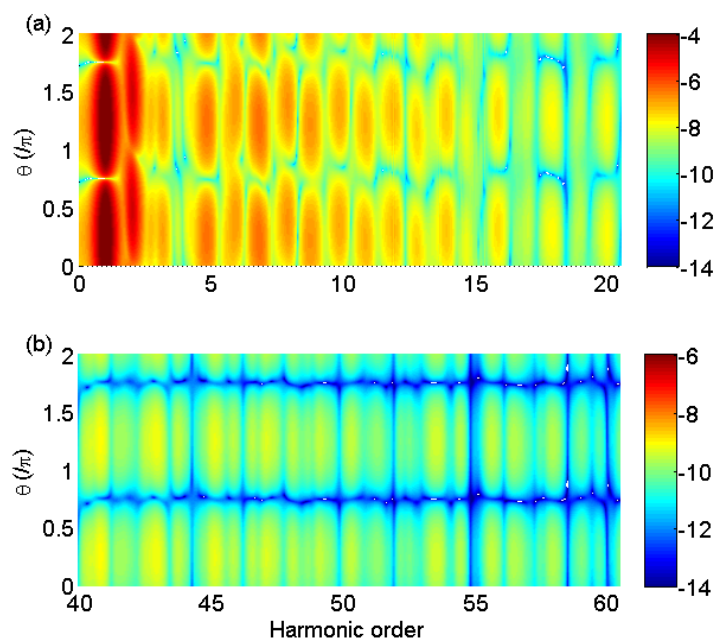


图 5-5 氦原子在三束线偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布。驱动光为沿着 x 方向偏振的 800 nm 光与沿着 y 方向偏振的 800 nm+400 nm 组合光，三束激光的脉宽均为 $\tau = 3T_0$ ，两束 800 nm 光光强均为 $I = 5 \times 10^{14}$ W/cm²，相位均为 0，400 nm 光光强为 $I = 2 \times 10^{13}$ W/cm²，相位为 0。(a) 低阶谐波 (0 ~ 20 阶)。(b) 高阶谐波 (40 ~ 60 阶)。

Fig 5-5 The polarization angle distribution of the HHG spectra from a helium atom radiated by three linearly polarized laser fields. The driving laser field is the combination of a x -polarized 800 nm laser and a y -polarized 800 nm+400 nm combined laser field, the duration of each pulse is $\tau = 3T_0$, the intensity of each 800 nm light is $I = 5 \times 10^{14}$ W/cm², the CEP of each 800 nm pulse is 0, the intensity of the 400 nm light is $I = 2 \times 10^{13}$ W/cm², the CEP of the 400 nm light is 0. (a) The low-order part of the harmonic spectrum (0 ~ 20th harmonics). (b) The low-order part of the harmonic spectrum (40 ~ 60th harmonics).

nm 光相位为 $\phi = 0$ ，图5-5(a) 和 (b) 分别是低阶谐波和高阶谐波，这里的谐波阶次依然是针对 800 nm 驱动光而言。

从图5-5(a) 可以看到，对于阶次较低的谐波 (0 ~ 20 阶)，相邻的奇次和偶次谐波的角分布有明显不同，而从图 (b) 可以看出，对于较高阶次的谐波 (40 ~ 60 阶)，奇次和偶次谐波的偏振角分布变得很接近。在合适的条件下，当倍频光相对于基频光而言很弱时，偶次谐波的信息可以反映出对高次谐波产生做出主要贡献的轨道 [450]。仔细观察图中的奇次谐波和偶次谐波的偏振角分布可以发现，奇次谐波其实基本一直沿着 $\pi/4$ 方向，而偶次谐波则是偏振角度一直在减小，从最开始低阶的将近 $\pi/2$ 逐渐减小到高阶的 $\pi/4$ ，所以看起来和奇次谐波趋于一致。对于奇次谐波来说，800 nm 基频光自然是占绝对主导地位的驱动源，因此奇次谐波全都沿着 800 nm 光的偏振方向，由 (5-10) 式易知就是 $\pi/4$ 方向。对于偶次谐波来说，400 nm 倍频光是其主要驱动源。先前的理论研究指出，在倍频光较弱的情况下，低阶谐波的主要贡献来自于短轨道，倍频光对电子轨道有较大影响，而高阶谐波的主要贡献来自于长轨道，倍频光对电子轨道影响较小 [433]。因此，低阶偶次谐波的偏振方向由于受到倍频光的影响，没有完全沿着强基频光的方向，然而随着阶次增大，倍频光的影响逐渐减小，因此高阶偶次谐波的偏振方向也逐渐趋于基频光方向，和奇次谐波的偏振角度越来越接近，值得强调的是，出现这种性质的前提条件是倍频光的光强相对于基频光很弱。

为了验证低能区域偶次谐波的偏振性质确实是受到 400 nm 驱动光的影响，我们将 400 nm 光的相位调节为 $\phi = 0.5\pi$ 进行计算，得到的高次谐波偏振角分布如图5-6所示。从图5-6(a) 可以发现，低阶偶次谐波的偏振角度与奇次谐波非常接近，明显和图5-5(a) 中不同，说明改变 400 nm 光的相位确实影响了对低阶偶次谐波做出主要贡献的电子轨道。而随着阶次的增大，偶次谐波的偏振角度和奇次谐波趋于一致，如图5-6(b) 所示，造成这一点的原因与上文关于图5-5的阐释相同。

5.4 本章小结

在本章中，我们探究了原子在三种不同形式的组合激光场作用下的高次谐波辐射的偏振性质。在双色垂直线偏振激光场和双色圆偏振激光场条件下，不同阶次的谐波有不同的偏振方向，对于某一特定阶次的谐波，其偏振角度还会受到双色场的相对相位、强度之比等参数的调制，在两束强基频光与一束弱倍频光叠加的三光场组合条件下，奇次谐波和偶次谐波表现出了不同的偏振性质，偶次谐波的偏振角度体现出了弱倍频光的作用。高次谐波的偏振角度随阶次的变化的物理本质是电子轨道的变化，调节激光参数就是改变电子产生与电子回撞母核的时间，从而改变回撞的角度，进而影响高次谐波辐射的偏振角度。我们的研究揭示了这种谐波偏振方向随阶次而变的性质是组合光场效应和

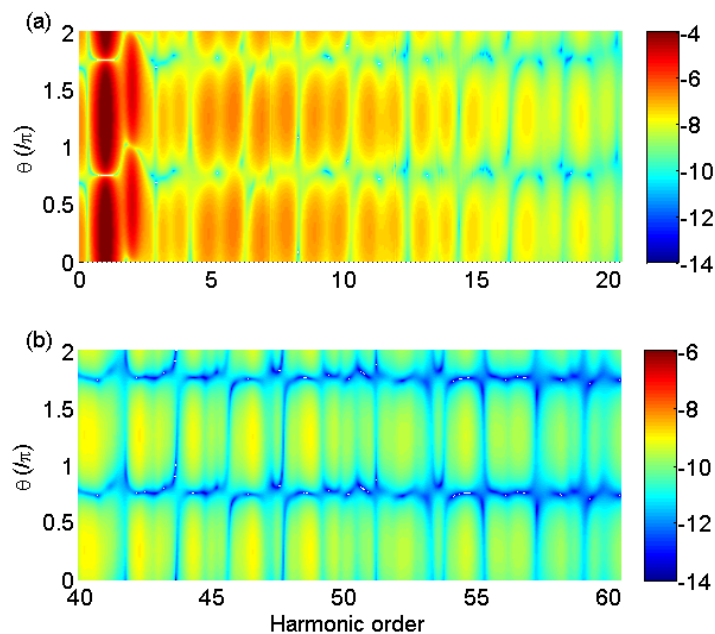


图 5-6 氦原子在三束线偏振激光场中生成高次谐波的偏振角分布。驱动光为沿着 x 方向偏振的 800 nm 光与沿着 y 方向偏振的 800 nm+400 nm 组合光。所有激光参数均与图 5-5 一致，除了 400 nm 光相位变为 0.5π 。(a) 低阶谐波 (0 ~ 20 阶)。(b) 高阶谐波 (40 ~ 60 阶)。

Fig 5-6 The polarization angle distribution of the HHG spectra from a helium atom radiated by three linearly polarized laser fields. The driving laser field is the combination of a x -polarized 800 nm laser and a y -polarized 800 nm+400 nm combined laser field. All the laser parameters are the same as those in Fig. 5-5 except that the CEP of the 400 nm light is changed to 0.5π . (a) The low-order part of the harmonic spectrum (0 ~ 20th harmonics). (b) The low-order part of the harmonic spectrum (40 ~ 60th harmonics).

少周期脉冲效应。从频域角度考虑，这种性质可以通过偏振选择用来挑选出单一频率的谐波光子辐射，从时域角度考虑，这种性质也意味着整个脉冲辐射的平均偏振角度可能是随着时间在不断变化的，通过偏振选择可能会对缩短脉冲宽度和生成单个阿秒脉冲有所帮助。

第六章 总结和展望

6.1 总结

超强超短激光脉冲与物质的相互作用催生了以强场物理和超快物理为代表的全新物理学研究领域。物质在激光的作用下，根据光强、频率等激光参数条件的不同，会发生各种不同的非线性响应，也体现出其背后不同的物理机制。当激光强度达到原子内部库仑场相同量级甚至更高时，电子会发生电离，从束缚态跃迁到连续态，随后在激光场里振荡运动，而且振幅可以远超原子的玻尔半径，这种非线性响应必须用非微扰理论来描述。原子被强激光场电离之后，电子在激光场中有各种不同的运动轨迹，有些电子会一直远离母核，有些则还会返回并发生再散射，这就可能生成高次谐波辐射——一种典型的强场非微扰现象。高次谐波辐射是优质的台面相干极紫外和 X 射线光源，既能用来合成阿秒脉冲，作为超快时间分辨工具，又能用来探测物质构造，作为结构诊断成像工具，因此有着重要的研究意义和巨大的应用价值。

在本论文中，我们通过数值模拟，对强激光场与物质相互作用生成高次谐波这一现象进行了研究，可分为原子体系与单色激光场的作用、固体材料与单色激光场的作用和原子体系与组合激光场的作用三大方面，主要的研究成果总结归纳如下：

第一，我们以氢原子为作用靶，研究了原子核库仑势对高次谐波辐射的影响。在氢原子的阈下谐波辐射谱中，我们观察到了以往只在具有自电离态的多电子体系中才可能出现的法诺干涉现象，并且法诺干涉受到库仑势的影响。我们的研究表明，虽然氢原子没有自电离态，但在合适的激光条件下，电子的连续态—束缚态跃迁和束缚态—束缚态跃迁会在阈下谐波频段贡献相同频率的辐射，这两种量子通道的干涉可以在谐波谱中形成法诺线型。而如果对库仑势加以一定程度的屏蔽，那么由束缚态—束缚态跃迁形成的分立峰会与由连续态—束缚态跃迁形成的谐波峰在谐波谱中分开，法诺线型也随之消失。另外，库仑势对阈下谐波和阈上谐波的影响是不同的：屏蔽库仑势会对阈下谐波产生明显的调制，但这对阈上谐波几乎没有影响；增大激光的椭偏率会显著抑制阈上谐波的产生，但对阈下谐波的产生影响不大，这是因为阈上谐波主要源于远离原子核运动的电子，而阈下谐波主要源于靠近原子核运动的电子以及束缚态之间的跃迁。我们的研究展示了法诺共振在单电子体系中也能出现，这为法诺现象的研究提供了一个更为广阔的视角。我们还揭示了库仑势在阈上谐波和阈下谐波的产生中所起的不同作用，这有助于人们对高次谐波产生的物理机制有更全面的理解。

第二，我们研究了二维准周期性结构体系在近红外激光场中电离产生的光电子动量

分布和高次谐波辐射谱。我们采用二维 **Kronig-Penney** 模型势场来模拟固体材料，但势阱数目为有限值，并分别研究了驱动激光是线偏振和圆偏振的情形。光电子动量分布谱可以在一定程度上反映出固体材料的能带结构信息。对于高次谐波谱而言，在线偏振驱动光作用下，增大势阱数目或增大光强都可以导致高次谐波谱截止能量的延展以及多平台区的出现，并且和光电子 **ATI** 能谱中的平台区具有一定的能量对应关系；在圆偏振驱动激光作用下，由带内跃迁导致的低阶谐波的椭偏率和驱动光椭偏率十分接近，并且螺旋的正反方向随着谐波阶次交替变化，而由带间跃迁导致的高阶谐波的椭偏率则和驱动光椭偏率不一定相同，并没有稳定的椭偏率，而是随时间不断变化的。我们的研究提供了仅用一束椭圆偏振驱动激光来产生椭圆偏振高次谐波的可能性。我们的研究也揭示了光电子动量谱和高次谐波谱携带二维材料的结构信息，对未来基于激光的表面成像技术的发展可能产生一定的应用价值。

第三，我们以氢原子和氦原子为作用体系，探究了原子在组合激光场作用下的高次谐波辐射的偏振性质，驱动激光均为少周期脉冲，组合形式分为三种：双色垂直线偏振激光场、双色圆偏振激光场和三束激光叠加场。在双色垂直线偏振激光场和双色圆偏振激光场条件下，从整个高次谐波谱来看，谐波的偏振方向角度随着阶次而明显变化，从某一特定阶次谐波来看，其偏振角度会受到双色场的光强相对大小、相对相位等参数的影响。在两束强基频光与一束弱倍频光叠加的三束光组合场下，奇次谐波和偶次谐波的偏振角度分布有明显的差异，奇次谐波的偏振方向全都沿着强基频光的偏振方向，而偶次谐波则不完全如此，偏振方向依赖于谐波能量而变，这反映出弱倍频光对偶次谐波的影响。高次谐波的偏振角度随阶次的变化的物理本质是电子轨道的变化，调节激光参数就是改变电子产生与电子回撞母核的时间，从而改变回撞的角度，进而影响高次谐波辐射的偏振角度。我们的研究揭示了这种谐波偏振方向随阶次而变的性质是组合光场效应和少周期脉冲效应。这种性质可以用来挑选出单一频率的谐波辐射，也为缩短高次谐波阿秒脉冲宽度以及生成单个阿秒脉冲提供了一种新的可能方案。

6.2 展望

毕业论文写到这一部分时，意味着我博士生涯的学术研究即将告一段落，人生也将迎来一个新的临界点，难免抚今追昔，展望未来。

回想自己的科研生涯，从在上海交大读本科时期就已经开始了。那时，对科研有着浓厚兴趣的我不仅跟着物理系的老师们做课题，也跟一些其他工科院系的老师做项目，并且在 **SCI** 国际期刊上发表了论文。2011 年，我本科毕业并在交大直博，当时跟随导师从事的是超强激光驱动的超快电子衍射实验研究。从 2011 年 9 月起，课题组（当时学生仅有一名准博士后和包括我在内的两名直博新生）从零开始搭建整个实验系统，从

购买各种设备搭建系统，到刻苦学习强激光实验技术，再加上作为博士新生还要修读各类课程，我终因劳累过度而积劳成疾，于 2012 年 12 月大病爆发，不得不接受手术治疗，在家休养直至 2013 年 6 月。在主治医生的再三警醒下，我意识到身体条件确实不允许我再继续从事高强度的实验工作，只能转换导师，从 2013 年 9 月起开始从事理论研究。一晃就又是四年多过去了，这四年来，不知多少次，被大病后遗症的痛苦弄得夜不能寐，不知多少次，在大脑还渴望探索物理之美时身体却已累得力不从心。然而我也相信，艰难困苦，玉汝于成，虽然我比其他正常学生需要更多的休息时间，但这四年多的时间里我抛弃了所有的娱乐活动，除了必要的身体恢复和休养之外，我把全部精力都投入了科研工作。在导师的精勤指导下，我也尽己所能地完成了几项课题任务。

接下来，我想从近期和远期两个层面对未来工作进行展望。

从近期来看，如果我的身体条件允许，我的研究工作可以从以下几方面继续开展。

第一，我们已经以氢原子为例，从理论上预言了单电子体系里也可以存在法诺干涉，但单电子体系不仅限于氢原子，下一步我们可以将原子体系推广到分子体系，例如 H_2^+ 、 HD^+ 等，在分子体系中，由于原子核也会运动，异核分子的各原子核运动速度也不同，因此体系自由度更高，法诺干涉的存在性和可控性也具有更多的未知空间，这些都值得我们去进一步探索。

第二，我们目前对固体材料的电离和高次谐波计算采用的是单电子近似，在将来的理论研究中，我们期待借鉴一些其它理论方法，进一步优化程序，使得程序可以包含多电子关联效应，从而更符合固体材料的实际物理情况。

第三，在原子与少周期多束激光组合场相互作用生成高次谐波的偏振性质研究中，我们未来的计算可以考虑对激光场加入时间啁啾或空间啁啾，从而探索如何使不同阶次的谐波在偏振方向上分得更开，从而更有利于挑选单一能量的谐波光子。我们也期待与实验组合作，从而验证这种偏振性质对挑选单一能量光子和缩短高次谐波阿秒脉冲宽度的实际功效。

第四，对阈下谐波的研究可以推广到分子体系和固体材料，由于这些复杂体系具有更多的原子核，因此可以从更多的维度来考察原子核库仑势对阈下谐波的影响，从而加深对阈下谐波产生机制的理解。另外，从计算方法上也可以考虑使用求解 TDSE 以外的方法。目前的 SFA 理论在电子电离后就彻底忽略库仑势的作用，因此只适合用于研究阈上谐波。未来的计算可以考虑加入库仑势效应，如使用 Coulomb-Volkov 近似理论 (Coulomb-Volkov approximation, CVA) [451]，来进行与库仑势有着紧密联系的阈下谐波。

放眼长远的未来，一方面，超强超短激光脉冲技术将会变得日趋成熟，目前正在建设之中的世界最强激光——极端光基础设施 (Extreme Light Infrastructure, ELI) 将完全有可能使得激光峰值功率密度达到乃至超过 10^{24} W/cm^2 ，从而对强场物理和超快物理等

领域产生重要影响，也势必会有更多新奇有趣的物理现象值得我们去探索。另一方面，伴随着材料科学的发展，各种复合材料、低维材料、甚至惰性气体固体 (**rare-gas solid, RGS**)[452] 等新型材料不断涌现，未来基于各种复杂体系的高次谐波研究将得到更多的发展，也会有更多的高次谐波新特性值得我们去研究。

附录 A 主要程序源代码

代码 A.1 用 Crank-Nicholson 方法求解 TDSE 模拟原子在激光场作用下生成高次谐波

```

1  #include <math.h>
2  #include <vector>
3  #include <iostream>
4  #include <complex>
5  #include <fstream>
6  #include <time.h>
7  #include <omp.h>
8  #include <stdlib.h>
9
10 using namespace std;
11
12 complex<double> xu(0., 1.);
13 double pi=3.14159265;
14 double Me=1.;
15
16 double xmol=150,dx=0.2;
17 double ymol=150,dy=0.2;
18 double xmin=-xmol,xmax=xmol,xcut=0.9*xmax;
19 double ymin=-ymol,ymax=ymol,ycut=0.9*ymax;
20 int Nx=int((xmax-xmin)/dx+1), Ny=int((ymax-ymin)/dy+1);
21 // 设置空间网格参数
22
23 double I0=5e12, E0=sqrt(I0_IR/3.51e16), omg=0.057;
24 double ellip=0., kx=1/sqrt(1+ellip*ellip), ky=ellip/sqrt(1+ellip*ellip);
25 double T=2*pi/omg, tau1=5.*T, tau2=40.*T, dt=0.2, ti=0., tf=tau2;
26 // 设置激光参数和时间参数
27
28 int Nt=int((tf-ti)/dt+1);
29 vector<double> t(Nt), Ex(Nt),Ey(Nt),Ax(Nt),Ay(Nt), x(Nx),y(Ny),px(Nx),py(Ny);
30 vector<vector<double> > v(Nx, vector<double> (Ny));
31 vector<vector<double> > dvx(Nx, vector<double> (Ny));
32 vector<vector<double> > dvy(Nx, vector<double> (Ny));
33
34 vector<vector<complex<double> > > wave(Nx,vector<complex<double> > (Ny));
35
36 vector< vector <complex <double> > > Hx_VG(vector< vector <complex <double> > >
    & wave, complex <double> dt, complex <double> field);

```

```

37 vector< vector <complex <double> > > Hy_VG(vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field);
38 vector< vector <complex <double> > > Hx_LG(vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field);
39 vector< vector <complex <double> > > Hy_LG(vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field);
40
41 vector< vector <complex <double> > > Normalize( vector< vector <complex <double>
      > > & wave);
42 complex <double> Eng( vector< vector <complex <double> > > & wave);
43 vector< vector <complex <double> > > mask( vector< vector <complex <double> > >
      & wave);
44
45 int main()
46 {
47     clock_t start, finish;
48     double duration;
49     start=clock();
50
51     for (int i=0; i<Nt; i++)
52     {
53         t[i]=ti+dt*i;
54         Ex[i]=kx*EO_IR*cos(omg_IR*(t[i]-15*T))*exp(-2*log(2)*(t[i]-15*T)*(t[i]-15*
55             T)/(taul*taul));
56         Ey[i]=ky*EO_IR*sin(omg_IR*(t[i]-15*T))*exp(-2*log(2)*(t[i]-15*T)*(t[i]-15*
57             T)/(taul*taul));
58     }
59
60     Ax[0]=Ex[0]*dt;
61     Ay[0]=Ey[0]*dt;
62     for (int i=0; i<Nt-1; i++)
63     {
64         Ax[i+1]=Ax[i]-Ex[i+1]*dt;
65         Ay[i+1]=Ay[i]-Ey[i+1]*dt;
66     }
67
68     ifstream fin("v_xy.txt");
69     for (int ix=0; ix<Nx; ix++)
70         for (int iy=0; iy<Ny; iy++)
71             fin >> v[ix][iy];
72     fin.close();
73     // 导入势能 V(x,y) 数据

```

```
74   for (int j=1; j<Ny-1; j++)
75       for (int i=1; i<Nx-1; i++)
76           {
77               dvx[i][j]=(v[i+1][j]-v[i-1][j])/(2.*dx);
78               dvy[i][j]=(v[i][j+1]-v[i][j-1])/(2.*dy);
79           }
80   // 分别计算 v 对 x 和对 y 的偏导数
81
82
83   for (int i=0; i<Nx; i++)
84       for (int j=0; j<Ny; j++)
85           {
86               wave[i][j]=exp(-0.5*(x[i]*x[i]+y[j]*y[j]));
87           }
88
89   complex<double> energy0=0,energy=0,episolon=1;
90   int nstep=0;
91   while(real(episolon) > 1e-16)
92       {
93           wave=Hy_VG(wave,-xu*dt/2.,0.0);
94           wave=Hx_VG(wave,-xu*dt/1.,0.0);
95           wave=Hy_VG(wave,-xu*dt/2.,0.0);
96           wave= Normalize(wave);
97
98           energy=Eng(wave);
99           episolon=abs(energy-energy0);
100          energy0=energy;
101          nstep=nstep+1;
102      }
103   // 虚时间演化法求初态 (基态) 波函数
104
105   ofstream out81("initial_wave_Re.txt");
106   for(int i=0;i<Nx;i++)
107       {
108           for( int j=0;j<Ny;j++ )
109               out81<< real(wave[i][j]) << "\t";
110               out81<<endl;
111       }
112
113   ofstream out82("initial_wave_Im.txt");
114   for(int i=0;i<Nx;i++)
115       {
116           for( int j=0;j<Ny;j++ )
117               out82<< imag(wave[i][j]) << "\t";
```

```
118     out82<<endl;
119 }
120 // 输出初态波函数
121
122
123 double sumx,sumy;
124 vector<complex<double> > dipx(Nt),dipy(Nt);
125
126 for(int it=0; it<Nt; it++)
127 {
128     wave=Hy_LG(wave,dt/2., Ey[it]);
129     wave=Hx_LG(wave,dt/1., Ex[it]);
130     wave=Hy_LG(wave,dt/2., Ey[it]);
131     wave=mask(wave);
132 // 波函数的演化
133
134     sumx=0;
135     sumy=0;
136     for (int i=0; i<Nx; i++ )
137         for (int j=0; j<Ny; j++ )
138             {
139                 sumx+=norm(wave[i][j])*(-dvx[i][j])*dx*dy;
140                 sumy+=norm(wave[i][j])*(-dvy[i][j])*dy*dx;
141             }
142     dipx[it]=sumx;
143     dipy[it]=sumy;
144 // 计算 x 和 y 方向的偶极矩
145 }
146
147 ofstream out91("final_wave_Re.txt");
148 for(int i=0;i<Nx;i++)
149 {
150     for( int j=0;j<Ny;j++ )
151         out91<< real(wave[i][j]) << "\t"; // Real part of final psi
152     out91<<endl;
153 }
154
155 ofstream out92("final_wave_Im.txt");
156 for(int i=0;i<Nx;i++)
157 {
158     for( int j=0;j<Ny;j++ )
159         out92<< imag(wave[i][j]) << "\t"; // Imaginary part of final psi
160     out92<<endl;
161 }
```

```

162 // 输出末态波函数
163
164 ofstream out100("dipole.txt");
165 for(int i=0;i<Nt;i++)
166     out100<< real(dipx[i]) << "\t" << real(dipy[i]) << endl;
167 // 输出 x 和 y 方向的偶极矩
168
169
170 finish=clock();
171 duration=(double)( finish-start )/CLOCKS_PER_SEC;
172 cout << "The calculation time = " << duration << endl;
173
174 return 0;
175
176 }
177
178
179 // 以下为各个需要调用的子函数
180
181 vector< vector <complex <double> > > Hx_VG( vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field)
182
183 {
184     complex<double> ad=0.25*xu*dt/(dx*dx*Me),bd=-0.5*xu*dt,bet=0.;
185     vector<complex<double> > a(Nx),b(Nx),c(Nx),d(Nx),z(Nx),gam(Nx);
186
187     for (int iy=0; iy<Ny; iy++)
188     {
189         a[0]=0.0;
190         b[0]=1.0+2.0*ad-bd*v[0][iy]*0.5;
191         c[0]=-ad-bd*xu/(2.*dx)*Me*field;
192         a[Nx-1]=-ad+bd*xu/(2.*dx)*Me*field;
193         b[Nx-1]=1.0+2.0*ad-bd*v[Nx-1][iy]*0.5;
194         c[Nx-1]=0.0;
195         d[0]=(1.0-2.*ad+bd*v[0][iy]*0.5)*wave[0][iy]+(ad+bd*xu/(2.*dx)*Me*field)*
            wave[1][iy];
196         d[Nx-1]=(ad-bd*xu/(2.*dx)*Me*field)*wave[Nx-2][iy]+(1.0-2.*ad+bd*v[Nx-1][
            iy]*0.5)*wave[Nx-1][iy];
197
198     #pragma omp parallel for num_threads(8)private(bet)
199         for( int ix=1;ix<Nx-1;ix++ )
200         {
201             a[ix]=-ad+bd*xu/(2.*dx)*Me*field;
202             b[ix]=1.0+2.0*ad-bd*v[ix][iy]*0.5;

```

```

203     c[ix]=-ad-bd*xu/(2.*dx)*Me*field;
204     d[ix]=(ad-bd*xu/(2.*dx)*Me*field)*wave[ix-1][iy]+(1.0-2.*ad+bd*v[ix][iy]
        ]*0.5)*wave[ix][iy]
205     +(ad+bd*xu/(2.*dx)*Me*field)*wave[ix+1][iy];
206 }
207
208     if (b[0]==(0.,0.))
209 cout<< "A minor is zero: Method fails"<< endl;
210
211     z[0]=d[0]/(bet=b[0]);
212
213     for( int i=1;i<Nx;i++ )
214     {
215         gam[i]=c[i-1]/bet;
216         bet=b[i]-a[i]*gam[i];
217         if (bet==(0.,0.))
218             cout<< "Error 2 in tridag"<< endl;
219
220         z[i]=(d[i]-a[i]*z[i-1])/bet;
221     }
222     for( int i=(Nx-2);i>=0;i-- )
223         z[i]=z[i]-gam[i+1]*z[i+1];
224 #pragma omp parallel for num_threads(8)
225     for( int i=0;i<Nx;i++ )
226         wave[i][iy]=z[i];
227
228 }
229
230 return wave;
231 }
232
233
234 vector< vector <complex <double> > > Hy_VG( vector< vector <complex <double> > >
        & wave, complex <double> dt, complex <double> field)
235
236 {
237     complex<double> ad2=0.25*xu*dt/(dy*dy*Me),bd=-0.5*xu*dt,bet2=0.;
238     vector<complex<double> > a2(Ny),b2(Ny),c2(Ny),d2(Ny),z2(Ny),gam2(Ny);
239
240     for (int ix=0; ix<Nx; ix++)
241     {
242         a2[0]=0.0;
243         b2[0]=1.0+2.0*ad2-bd*v[ix][0]*0.5;
244         c2[0]=-ad2-bd*xu/(2.*dy)*Me*field;

```

```

245     a2[Ny-1]=-ad2+bd*xu/(2.*dy)*Me*field;
246     b2[Ny-1]=1.0+2.0*ad2-bd*v[ix][Ny-1]*0.5;
247     c2[Ny-1]=0.0;
248     d2[0]=(1.0-2.*ad2+bd*v[ix][0]*0.5)*wave[ix][0]+(ad2+bd*xu/(2.*dy)*Me*field
        )*wave[ix][1];
249     d2[Ny-1]=(ad2-bd*xu/(2.*dy)*Me*field)*wave[ix][Ny-2]+(1.0-2.*ad2+bd*v[ix][
        Ny-1]*0.5)*wave[ix][Ny-1];
250
251     #pragma omp parallel for num_threads(8)private(bet2)
252     for( int iy=1;iy<Ny-1;iy++ )
253     {
254         a2[iy]=-ad2+bd*xu/(2.*dy)*Me*field;
255         b2[iy]=1.0+2.0*ad2-bd*v[ix][iy]*0.5;
256         c2[iy]=-ad2-bd*xu/(2.*dy)*Me*field;
257         d2[iy]=(ad2-bd*xu/(2.*dy)*Me*field)*wave[ix][iy-1]+(1.0-2.*ad2+bd*v[ix][iy
            ]*0.5)*wave[ix][iy
258             +(ad2+bd*xu/(2.*dy)*Me*field)*wave[ix][iy+1];
259     }
260
261     if (b2[0]==(0.,0.))
262     cout<< "B minor is zero: Method fails"<< endl;
263
264     z2[0]=d2[0]/(bet2=b2[0]);
265
266     for( int i=1;i<Ny;i++ )
267     {
268         gam2[i]=c2[i-1]/bet2;
269         bet2=b2[i]-a2[i]*gam2[i];
270         if (bet2==(0.,0.))
271             cout<< "Error 4 in tridag"<< endl;
272
273         z2[i]=(d2[i]-a2[i]*z2[i-1])/bet2;
274     }
275     for( int i=(Ny-2);i>=0;i-- )
276         z2[i]=z2[i]-gam2[i+1]*z2[i+1];
277     #pragma omp parallel for num_threads(8)
278     for( int i=0;i<Ny;i++ )
279         wave[ix][i]=z2[i];
280     }
281     return wave;
282 }
283
284

```



```

285 vector< vector <complex <double> > > Hx_LG( vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field)
286
287 {
288   complex<double> ad=0.25*xu*dt/(dx*dx*Me),bd=-0.5*xu*dt,bet=0.;
289   vector<complex<double> > a(Nx),b(Nx),c(Nx),d(Nx),z(Nx),gam(Nx);
290
291   for (int iy=0; iy<Ny; iy++)
292   {
293     a[0]=0.0;
294     b[0]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[0][iy]+Me*x[0]*field);
295     c[0]=-ad;
296     a[Nx-1]=-ad;
297     b[Nx-1]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[Nx-1][iy]+Me*x[Nx-1]*field);
298     c[Nx-1]=0.0;
299     d[0]=wave[0][iy]+ad*(wave[1][iy]-2.0*wave[0][iy])+bd*(0.5*v[0][iy]+Me*x
      [0]*field)*wave[0][iy];
300     d[Nx-1]=wave[Nx-1][iy]+ad*(-2.0*wave[Nx-1][iy]+wave[Nx-2][iy])+bd*(0.5*v[
      Nx-1][iy]+Me*x[Nx-1]*field)*wave[Nx-1][iy];
301
302     #pragma omp parallel for num_threads(8)private(bet)
303     for( int ix=1;ix<Nx-1;ix++ )
304     {
305       a[ix]=-ad;
306       b[ix]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[ix][iy]+Me*x[ix]*field);
307       c[ix]=-ad;
308       d[ix]=wave[ix][iy]+ad*(wave[ix+1][iy]-2.0*wave[ix][iy]+wave[ix-1][iy])+bd
        *(0.5*v[ix][iy]+Me*x[ix]*field)*wave[ix][iy];
309
310     }
311
312     if (b[0]==(0.,0.))
313     cout<< "A minor is zero: Method fails"<< endl;
314
315     z[0]=d[0]/(bet=b[0]);
316
317     for( int i=1;i<Nx;i++ )
318     {
319       gam[i]=c[i-1]/bet;
320       bet=b[i]-a[i]*gam[i];
321       if (bet==(0.,0.))
322       cout<< "Error 2 in tridag"<< endl;
323
324       z[i]=(d[i]-a[i]*z[i-1])/bet;

```

```

325     }
326     for( int i=(Nx-2);i>=0;i-- )
327     z[i]=z[i]-gam[i+1]*z[i+1];
328 #pragma omp parallel for num_threads(8)
329     for( int i=0;i<Nx;i++ )
330     wave[i][iy]=z[i];
331     }
332
333     return wave;
334 }
335
336
337 vector< vector <complex <double> > > Hy_LG( vector< vector <complex <double> > >
      & wave, complex <double> dt, complex <double> field)
338
339 {
340     complex<double> ad=0.25*xu*dt/(dx*dx*Me),bd=-0.5*xu*dt,bet=0.;
341     vector<complex<double> > a(Nx),b(Nx),c(Nx),d(Nx),z(Nx),gam(Nx);
342
343     for (int ix=0; ix<Nx; ix++)
344     {
345         a[0]=0.0;
346         b[0]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[ix][0]+Me*y[0]*field);
347         c[0]=-ad;
348         a[Ny-1]=-ad;
349         b[Ny-1]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[ix][Ny-1]+Me*y[Ny-1]*field);
350         c[Ny-1]=0.0;
351         d[0]=wave[ix][0]+ad*(wave[ix][1]-2.0*wave[ix][0])+bd*(0.5*v[ix][0]+Me*y
            [0]*field)*wave[ix][0];
352         d[Ny-1]=wave[ix][Ny-1]+ad*(-2.0*wave[ix][Ny-1]+wave[ix][Ny-2])+bd*(0.5*v[
            ix][Ny-1]+Me*y[Ny-1]*field)*wave[ix][Ny-1];
353
354     #pragma omp parallel for num_threads(8)private(bet)
355     for( int iy=1;iy<Ny-1;iy++ )
356     {
357         a[iy]=-ad;
358         b[iy]=1.0+2.0*ad-bd*(0.5*v[ix][iy]+Me*y[iy]*field);
359         c[iy]=-ad;
360         d[iy]=wave[ix][iy]+ad*(wave[ix][iy+1]-2.0*wave[ix][iy]+wave[ix][iy-1])+bd
            *(0.5*v[ix][iy]+Me*y[iy]*field)*wave[ix][iy];
361     }
362 }
363
364     if (b[0]==(0.,0.))

```

```

365     cout<< "A minor is zero: Method fails"<< endl;
366
367     z[0]=d[0]/(bet=b[0]);
368
369     for( int i=1;i<Ny;i++ )
370     {
371         gam[i]=c[i-1]/bet;
372         bet=b[i]-a[i]*gam[i];
373         if (bet==(0.,0.))
374             cout<< "Error 2 in tridag"<< endl;
375
376         z[i]=(d[i]-a[i]*z[i-1])/bet;
377     }
378     for( int i=(Ny-2);i>=0;i-- )
379         z[i]=z[i]-gam[i+1]*z[i+1];
380 #pragma omp parallel for num_threads(8)
381     for( int i=0;i<Ny;i++ )
382         wave[ix][i]=z[i];
383     }
384
385     return wave;
386 }
387
388
389 vector< vector <complex <double> > > Normalize( vector< vector <complex <double
    > > > & wave)
390 {
391     double suma=0;
392
393     for (int i=0; i<Nx; i++)
394         for (int j=0; j<Ny; j++)
395             suma+=norm(wave[i][j]);
396     suma*=(dx*dy);
397
398 #pragma omp parallel for num_threads(8)
399     for (int i=0; i<Nx; i++)
400         for (int j=0; j<Ny; j++)
401             wave[i][j]=wave[i][j]/sqrt(suma);
402
403     return wave;
404 }
405
406
407 complex <double> Eng( vector< vector <complex <double> > > & wave)

```

```

408 {
409     vector<vector<complex<double> > > wave_ppx(Nx,vector<complex<double> > (Ny));
410     vector<vector<complex<double> > > wave_ppy(Nx,vector<complex<double> > (Ny));
411     complex<double> enge=0;
412
413     #pragma omp parallel for num_threads(8)
414     for (int j=1; j<Ny-1; j++)
415         for (int i=1; i<Nx-1; i++)
416             {
417                 wave_ppx[i][j]=(wave[i+1][j]-2.0*wave[i][j]+wave[i-1][j])/(dx*dx);
418                 wave_ppy[i][j]=(wave[i][j+1]-2.0*wave[i][j]+wave[i][j-1])/(dy*dy);
419             }
420
421     for (int i=0; i<Nx; i++)
422         for (int j=0; j<Ny; j++)
423             enge+=conj(wave[i][j])*(-0.5/Me*wave_ppx[i][j]-0.5/Me*wave_ppy[i][j]+wave[
424                 i][j]*v[i][j])*dx*dy;
425
426     return enge;
427 }
428
429 vector< vector <complex <double> > > mask( vector< vector <complex <double> > >
430     & wave)
431 {
432     #pragma omp parallel for num_threads(8)
433     for( int i=0;i<Nx;i++ )
434         for( int j=0;j<Ny;j++ )
435             {
436                 if(abs(x[i])>xcut)
437                     wave[i][j]=wave[i][j]*pow(cos(0.5*pi*(abs(x[i])-xcut)/(xmax-xcut))
438                         ,0.125);
439                 if(abs(y[j])>ycut)
440                     wave[i][j]=wave[i][j]*pow(cos(0.5*pi*(abs(y[j])-ycut)/(ymax-ycut))
441                         ,0.125);
442             }
443     return wave;
444 }

```

代码 A.2 用 Morlet 小波变换进行时频分析

```

1 function Time_Frequency_Analysis
2 load data.mat omg T t dt dipx dipy
3

```

```
4 xu=sqrt(-1);
5 tau=15; % Morlet小波参数
6
7 tprime=t;
8 omg_range=linspace(0,10*omg,251);
9
10 Nt=length(t);
11 Nomg=length(omg_range);
12
13 TFA=zeros(Nomg,Nt); % 保存时频分析数据的矩阵
14
15 dipole=dipx;
16 % dipole=dipy;
17
18 for i=1:Nomg
19     for j=1:Nt
20         tt=tprime-t(j);
21         X=omg_range(i)*tt;
22         WX=1/sqrt(tau)*exp(xu*X).*exp(-X.^2/2/tau^2);
23         TFA(i,j)=sum(sqrt(omg_range(i))*dipole.*WX)*dt;
24     end
25 end
26 % Morlet小波变换
27
28 P=abs(TFA).^2;
29 figure
30 set(gcf, 'Renderer', 'zbuffer')
31 surf (t/T,omg_range/omg,log10(P),'FaceColor','interp','EdgeColor','none')
32 xlabel('Time (optical cycle)')
33 ylabel('Harmonic order')
34 view([0 90])
35 axis tight
36 caxis([-10 0])
37 colorbar
```

参考文献

- [1] F. Krausz and M. Ivanov. “Attosecond physics”. *Rev. Mod. Phys.* **2009**, 81: 163–234.
- [2] T. H. Maiman. “Stimulated Optical Radiation in Ruby”. *Nature*, **1960**, 187(187): 493–494.
- [3] T. Kato. *Perturbation theory for linear operators*. Springer-Verlag, **1966**.
- [4] F. J. McClung and R. W. Hellwarth. “Giant Optical Pulsations from Ruby”. *J. Appl. Phys.* **1962**, 33(1): 828–829.
- [5] A. J. DeMaria, C. M. Ferrar and G. E. Danielson. “Mode Locking of a Nd^{3+} -Doped Glass Laser”. *Appl. Phys. Lett.* **1966**, 8(1): 22–24.
- [6] D. Strickland and G. Mourou. “Compression of amplified chirped optical pulses”. *Opt. Commun.* **1985**, 55(6): 447–449.
- [7] Z. Wang, C. Liu, Z. Shen *et al.* “High-contrast 1.16 PW Ti:sapphire laser system combined with a doubled chirped-pulse amplification scheme and a femtosecond optical-parametric amplifier”. *Opt. Lett.* **2011**, 36(16): 3194–3196.
- [8] T. J. Yu, S. K. Lee, J. H. Sung *et al.* “Generation of high-contrast, 30 fs, 1.5 PW laser pulses from chirped-pulse amplification Ti:sapphire laser”. *Opt. Express*, **2012**, 20(10): 10807–10815.
- [9] Y. Chu, X. Liang, L. Yu *et al.* “High-contrast 2.0 Petawatt Ti:sapphire laser system”. *Opt. Express*, **2013**, 21(24): 29231–29239.
- [10] V. Yanovsky, V. Chvykov, G. Kalinchenko *et al.* “Ultra-high intensity- 300-TW laser at 0.1 Hz repetition rate”. *Opt. Express*, **2008**, 16(3): 2109–2114.
- [11] C. V. Shank and E. P. Ippen. “Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser”. *Appl. Phys. Lett.* **1974**, 24(8): 373–375.
- [12] R. L. Fork, B. I. Greene and C. V. Shank. “Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking”. *Appl. Phys. Lett.* **1981**, 38: 671–672.
- [13] R. L. Fork, C. H. Cruz, P. C. Becker *et al.* “Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation.” *Opt. Lett.* **1987**, 12(7): 483–485.

- [14] D. E. Spence, P. N. Kean and W Sibbett. “60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser.” *Opt. Lett.* **1991**, 16(1): 42–44.
- [15] A Baltuška, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov *et al.* “Optical pulse compression to 5 fs at a 1-MHz repetition rate”. *Opt. Lett.* **1997**, 22(2): 102–104.
- [16] G. Steinmeyer, D. H. Sutter, L. Gallmann *et al.* “Frontiers in Ultrashort Pulse Generation: Pushing the Limits in Linear and Nonlinear Optics”. *Science*, **1999**, 286(5444): 1507.
- [17] K. Yamane, Z. Zhang, K. Oka *et al.* “Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation”. *Opt. Lett.* **2003**, 28(22): 2258–2260.
- [18] E. Matsubara, K. Yamane, T. Sekikawa *et al.* “Generation of 2.6 fs optical pulses using induced-phase modulation in a gas-filled hollow fiber”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2007**, 24(4): 985–989.
- [19] T. Brabec and F. Krausz. “Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics”. *Rev. Mod. Phys.* **2000**, 72(2): 545–591.
- [20] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter *et al.* “Single-cycle nonlinear optics.” *Science*, **2008**, 320(5883): 1614–1617.
- [21] A. Baltuška, T. Fuji and T. Kobayashi. “Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers”. *Phys. Rev. Lett.* **2002**, 88: 133901.
- [22] J. F. Hergott, O. Tcherbakoff, P. M. Paul *et al.* “Carrier-Envelope Phase stabilization of a 20W, grating based, chirped-pulse amplified laser, using Electro-Optic effect in a LiNbO₃ crystal”. *Opt. Express*, **2011**, 19(21): 19935–19941.
- [23] T. Fuji, A. Apolonski and F. Krausz. “Self-stabilization of carrier-envelope offset phase by use of difference-frequency generation”. *Opt. Lett.* **2004**, 29(6): 632–634.
- [24] H-W. Yang, C. Kim, S. Y. Choi *et al.* “1.2-GHz repetition rate, diode-pumped femtosecond Yb:KYW laser mode-locked by a carbon nanotube saturable absorber mirror”. *Opt. Express*, **2012**, 20(28): 29518–29523.
- [25] M. Endo, A. Ozawa and Y. Kobayashi. “Kerr-lens mode-locked Yb:KYW laser at 4.6-GHz repetition rate”. *Opt. Express*, **2012**, 20(11): 12191–12197.
- [26] A. Töpler. “Vibroskopische Beobachtungen über die Schwingungsphasen singender Flammen (der chemischen Harmonica) mit Benutzung des Schlierenapparates”. *Ann. Phys. Chem.* **1866**, 128: 126–139.

- [27] S. Tzortzakis, M. A. Franco, Y.-B. André *et al.* “Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses”. *Phys. Rev. E*, **1999**, 60: R3505–R3507.
- [28] H. Yang, J. Zhang, W. Yu *et al.* “Long plasma channels generated by femtosecond laser pulses”. *Phys. Rev. E*, **2002**, 65: 016406.
- [29] Feng He, Wei Yu, Peixiang Lu *et al.* “Ponderomotive acceleration of electrons by a tightly focused intense laser beam”. *Phys. Rev. E*, **2003**, 68: 046407.
- [30] Feng He, Han Xu, Youwei Tian *et al.* “Ion cascade acceleration from the interaction of a relativistic femtosecond laser pulse with a narrow thin target”. *Phys. Plasmas*, **2006**, 13: 073102.
- [31] X. Q. Yan, C. Lin, Z. M. Sheng *et al.* “Generating High-current Monoenergetic Proton Beams by a Circularly Polarized Laser Pulse in the Phase-Stable Acceleration Regime”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 135003.
- [32] Min Chen, Tong Pu Yu, Alexander Pukhov *et al.* “Target shape effects on monoenergetic GeV proton acceleration”. *New J. Phys.* **2010**, 12(4): 045004.
- [33] L. J. Frasinski, J. H. Posthumus, J. Plumridge *et al.* “Manipulation of Bond Hardening in H_2^+ by Chirping of Intense Femtosecond Laser Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83: 3625–3628.
- [34] K. Sändig, H. Figger and T. W. Hänsch. “Dissociation Dynamics of H_2^+ in Intense Laser Fields: Investigation of Photofragments from Single Vibrational Levels”. *Phys. Rev. Lett.* **2000**, 85: 4876–4879.
- [35] P. Q. Wang, A. M. Saylor, K. D. Carnes *et al.* “Dissociation of H_2^+ in intense femtosecond laser fields studied by coincidence three-dimensional momentum imaging”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 043411.
- [36] Feng He, Camilo Ruiz and Andreas Becker. “Control of Electron Excitation and Localization in the Dissociation of H_2^+ and Its Isotopes Using Two Sequential Ultrashort Laser Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 99: 083002.
- [37] Feng He, Andreas Becker and Uwe Thumm. “Strong-Field Modulated Diffraction Effects in the Correlated Electron-Nuclear Motion in Dissociating H_2^+ ”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 101: 213002.
- [38] M. F. Kling, Ch. Siedschlag, A. J. Verhoef *et al.* “Control of Electron Localization in Molecular Dissociation”. *Science*, **2006**, 312(5771): 246–248.

- [39] G. Sansone, F. Kelkensberg, J. F. Pérez-Torres *et al.* “*Electron localization following attosecond molecular photoionization*”. *Nature*, **2010**, 465(7299): 763–766.
- [40] J. Xu, Z. Chen, A. T. Le *et al.* “*Self-imaging of molecules from diffraction spectra by laser-induced rescattering electrons*”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 82: 033403.
- [41] C. I. Blaga, J. Xu, A. D. Dichiara *et al.* “*Imaging ultrafast molecular dynamics with laser-induced electron diffraction*.” *Nature*, **2012**, 483(7388): 194–197.
- [42] J. C. Williamson, J. M. Cao, H. Ihee *et al.* “*Clocking transient chemical changes by ultrafast electron diffraction*”. *Nature*, **1997**, 386(6621): 159–162.
- [43] J. Yang, M Guehr, X. Shen *et al.* “*Diffraction Imaging of Coherent Nuclear Motion in Isolated Molecules*”. *Phys. Rev. Lett.* **2016**, 117: 153002.
- [44] Jiayong Zhong, Yutong Li, Xiaogang Wang *et al.* “*Modelling loop-top X-ray source and reconnection outflows in solar flares with intense lasers*”. *Nat. Phys.* **2010**, 6(2): 984–987.
- [45] Q. L. Dong, S. J. Wang, Q. M. Lu *et al.* “*Plasmoid ejection and secondary current sheet generation from magnetic reconnection in laser-plasma interaction*”. *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 108: 215001.
- [46] M. Jiang, W. Su, X. Lu *et al.* “*Electron-positron pair creation induced by quantum-mechanical tunneling*”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 83: 053402.
- [47] W. Y. Wu, F. He, R. Grobe *et al.* “*Creation of electron-positron pairs in oscillating electric fields*”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2015**, 32(9): 2009–2018.
- [48] A. H. Zewail. “*Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond*”. *J. Phys. Chem. A*, **2000**, 104(24): 5660–5694.
- [49] Fei He, Haiyi Sun, Min Huang *et al.* “*Rapid fabrication of optical volume gratings in Foturan glass by femtosecond laser micromachining*”. *Appl. Phys. A*, **2009**, 97(4): 853–857.
- [50] Fei He, Ya Cheng, Lingling Qiao *et al.* “*Two-photon fluorescence excitation with a microlens fabricated on the fused silica chip by femtosecond laser micromachining*”. *Appl. Phys. Lett.* **2010**, 96: 041108.
- [51] A Braun, G Korn, X. Liu *et al.* “*Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*”. *Opt. Lett.* **1995**, 20(1): 73–75.

- [52] Hui Yang, Jie Zhang, Qiuju Zhang *et al.* “Polarization-dependent supercontinuum generation from light filaments in air”. *Opt. Lett.* **2005**, 30(5): 534–536.
- [53] M. Göppert-Mayer. “Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen”. *Ann. Phys.* **1931**, 401(3): 273–294.
- [54] L. V. Keldysh. “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave”. *Sov. Phys. JETP*, **1965**, 20: 1307.
- [55] G. S. Voronov and N. B. Delone. “Ionization of the xenon atom by the electric field of ruby laser emission”. *Jetp. Lett.* **1965**, 1(2): 66.
- [56] L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus *et al.* “Multiphoton Ionization of Rare Gases at Very High Laser Intensity (10^{15} W/cm²) by a 30-psec Laser Pulse at 1.06 μ m”. *Phys. Rev. Lett.* **1976**, 36: 949–952.
- [57] P. G. Coleman, T. C. Griffith, G. R. Heyland *et al.* “Measurement of Positron-Rare Gas Total Cross-Sections at Intermediate Energies”. *Appl. Phys.* **1976**, 11: 321–325.
- [58] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray *et al.* “Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms”. *Phys. Rev. Lett.* **1979**, 42: 1127–1130.
- [59] E. Karule. “Two-photon ionisation of atomic hydrogen simultaneously with one-photon ionisation”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1978**, 11(3): 441–447.
- [60] Y. Gontier, M. Poirier and M. Trahin. “Multiphoton absorptions above the ionisation threshold”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1980**, 13(7): 1381–1387.
- [61] Y. Gontier and M. Trahin. “Energetic electron generation by multiphoton absorption”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1980**, 13(22): 4383–4390.
- [62] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini *et al.* “Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μ m”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1982**, 15(9): 1353–1369.
- [63] P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller *et al.* “Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm”. *Phys. Rev. A*, **1983**, 28: 248–255.
- [64] L. A. Lompré, A. L’Huillier, G. Mainfray *et al.* “Laser-intensity effects in the energy distributions of electrons produced in multiphoton ionization of rare gases”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1985**, 2(12): 1906–1912.
- [65] F. Yergeau, G. Petite and P. Agostini. “Above-threshold ionisation without space charge”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1986**, 19(19): L663–L669.

- [66] M. V. Ammosov, N. B. Delone and V. P. Krainov. “*Tunnel Ionization of Complex Atoms and Atomic Ions in Electromagnetic Field*”. *Sov. Phys. JETP*, **1986**, 64: 1191–1194.
- [67] P. B. Corkum, N. H. Burnett and F. Brunel. “*Above-Threshold Ionization in the Long-Wavelength Limit*”. *Phys. Rev. Lett.* **1989**, 62: 1259–1262.
- [68] G. G. Paulus, W Nicklich, H. Xu *et al.* “*Plateau in above threshold ionization spectra*”. *Phys. Rev. Lett.* **1994**, 72: 2851–2854.
- [69] B. Walker, B. Sheehy, K. C. Kulander *et al.* “*Elastic Rescattering in the Strong Field Tunneling Limit*”. *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 77: 5031–5034.
- [70] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang *et al.* “*Observation of Nonsequential Double Ionization of Helium with Optical Tunneling*”. *Phys. Rev. Lett.* **1992**, 69: 2642–2645.
- [71] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro *et al.* “*Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium*”. *Phys. Rev. Lett.* **1994**, 73: 1227–1230.
- [72] J. Chen, J. Liu, L. B. Fu *et al.* “*Interpretation of momentum distribution of recoil ions from laser-induced nonsequential double ionization by semiclassical rescattering model*”. *Phys. Rev. A*, **2000**, 63: 011404(R).
- [73] Jian Wu, Heping Zeng and Chunlei Guo. “*Polarization effects on nonsequential double ionization of molecular fragments in strong laser fields*”. *Phys. Rev. A*, **2007**, 75: 043402.
- [74] A. Staudte, C. Ruiz, M. Schöffler *et al.* “*Binary and Recoil Collisions in Strong Field Double Ionization of Helium*”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 99: 263002.
- [75] Xufei Sun, Min Li, Difa Ye *et al.* “*Mechanisms of Strong-Field Double Ionization of Xe*”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 113: 103001.
- [76] YanLan Wang, SongPo Xu, YongJu Chen *et al.* “*Wavelength scaling of atomic nonsequential double ionization in intense laser fields*”. *Phys. Rev. A*, **2017**, 95: 063415.
- [77] Baorui Yang, K. J. Schafer, B Walker *et al.* “*Intensity-dependent Scattering Rings in High Order Above-threshold Ionization*”. *Phys. Rev. Lett.* **1993**, 71: 3770–3773.
- [78] H. G. Muller and F. C. Kooiman. “*Bunching and Focusing of Tunneling Wave Packets in Enhancement of High-Order Above-Threshold Ionization*”. *Phys. Rev. Lett.* **1998**, 81: 1207–1210.
- [79] Qing Liao, Peixiang Lu, Pengfei Lan *et al.* “*Phase dependence of high-order above-threshold ionization in asymmetric molecules*”. *Phys. Rev. A*, **2008**, 77: 013408.

- [80] H. Kang, W. Quan, Y. Wang *et al.* “Structure Effects in Angle-Resolved High-Order Above-Threshold Ionization of Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 104: 203001.
- [81] Wei Quan, XuanYang Lai, YongJu Chen *et al.* “Resonancelike enhancement in high-order above-threshold ionization of molecules”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 88: 021401(R).
- [82] C. Wang, M. Okunishi, X. Hao *et al.* “Resonancelike enhancement in high-order above-threshold ionization of polyatomic molecules”. *Phys. Rev. A*, **2016**, 93: 043422.
- [83] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters *et al.* “Generation of Optical Harmonics”. *Phys. Rev. Lett.* **1961**, 7: 118–119.
- [84] P. D. Maker and R. W. Terhune. “Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength”. *Phys. Rev.* **1965**, 137(3A): A801–A818.
- [85] G. H. C. New and J. F. Ward. “Optical Third-Harmonic Generation in Gases”. *Phys. Rev. Lett.* **1967**, 19: 556–559.
- [86] S. E. Harris. “Generation of Vacuum-Ultraviolet and Soft-X-Ray Radiation Using High-Order Nonlinear Optical Polarizabilities”. *Phys. Rev. Lett.* **1973**, 31: 341–344.
- [87] B. W. Shore and P. L. Knight. “Enhancement of high optical harmonics by excess-photon ionisation”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1987**, 20(2): 413–423.
- [88] A. Mcpherson, G. Gibson, H. Jara *et al.* “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1987**, 4(4): 595–601.
- [89] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li *et al.* “Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1988**, 21(3): L31–L35.
- [90] X. F. Li, A. L’Huillier, M. Ferray *et al.* “Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity”. *Phys. Rev. A*, **1989**, 39: 5751–5761.
- [91] J. J. Macklin, J. D. Kmetec and C. L. Gordon III. “High-Order Harmonic Generation Using Intense Femtosecond Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1993**, 70: 766–769.
- [92] A. L’Huillier and P. Balcou. “High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser.” *Phys. Rev. Lett.* **1993**, 70: 774–777.
- [93] M. C. Kholer, T. Pfeifer, K. Z. Hatsagortsyan *et al.* “Frontiers of atomic high-harmonic generation”. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **2012**, 61: 159–208.
- [94] P. B. Corkum. “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”. *Phys. Rev. Lett.* **1993**, 71: 1994–1997.

- [95] J. L. Krause, K. J. Schafer and K. C. Kulander. “High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime”. *Phys. Rev. Lett.* **1992**, 68: 3535–3538.
- [96] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov *et al.* “Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”. *Phys. Rev. A*, **1994**, 49: 2117–2132.
- [97] K. C. Kulander. “Time-dependent theory of multiphoton ionization of xenon”. *Phys. Rev. A*, **1988**, 38: 778–787.
- [98] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler *et al.* “Tomographic imaging of molecular orbitals”. *Nature*, **2004**, 432(7019): 867–871.
- [99] K. Burnett, V. C. Reed, J. Cooper *et al.* “Calculation of the background emitted during high-harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **1992**, 45: 3347–3349.
- [100] A. Pukhov, S. Gordienko and T. Baeva. “Temporal Structure of Attosecond Pulses from Intense Laser-Atom Interactions”. *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 91: 173002.
- [101] W. Becker, A. Lohr, M. Kleber *et al.* “A unified theory of high-harmonic generation: Application to polarization properties of the harmonics”. *Phys. Rev. A*, **1997**, 56: 645–656.
- [102] Zenghu Chang, Andy Rundquist, Haiwen Wang *et al.* “Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics”. *Phys. Rev. Lett.* **1997**, 79: 2967–2970.
- [103] Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania *et al.* “Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses”. *Science*, **1997**, 278(5338): 661–664.
- [104] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Dimitar Popmintchev *et al.* “Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers”. *Science*, **2012**, 336(6086): 1287–1291.
- [105] T. Ditmire, J. K. Crane, H. Nguyen *et al.* “Energy-yield and conversion-efficiency measurements of high-order harmonic radiation”. *Phys. Rev. A*, **1995**, 51: R902–R905.
- [106] M. Yu. Ivanov, T. Brabec and N. Burnett. “Coulomb corrections and polarization effects in high-intensity high-harmonic emission”. *Phys. Rev. A*, **1996**, 54: 742–745.
- [107] I. J. Kim, C. M. Kim, H. T. Kim *et al.* “Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field”. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 94: 243901.

- [108] Pengfei Lan, Eiji J. Takahashi and Katsumi Midorikawa. “Wavelength scaling of efficient high-order harmonic generation by two-color infrared laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 81: 061802(R).
- [109] Kenichi Ishikawa. “Photoemission and Ionization of He^+ under Simultaneous Irradiation of Fundamental Laser and High-Order Harmonic Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 91: 043002.
- [110] Hongchuan Du, Huiqiao Wang and Bitao Hu. “Isolated short attosecond pulse generated using a two-color laser and a high-order pulse”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 81: 063813.
- [111] Cheng Jin, Guoli Wang, Hui Wei *et al.* “Waveforms for optimal sub-keV high-order harmonics with synthesized two- or three-colour laser fields”. *Nat. Commun.* **2014**, 5: 4003.
- [112] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek *et al.* “Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays”. *Nature*, **2000**, 406(6792): 164–166.
- [113] H. R. Lange, A. Chiron, J.-F. Ripoche *et al.* “High-Order Harmonic Generation and Quasiphase Matching in Xenon Using Self-Guided Femtosecond Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1998**, 81: 1611–1613.
- [114] A. Rundquist, C. G. Durfee III, Z. Chang *et al.* “Phase-matched generation of coherent soft x-rays”. *Science*, **1998**, 280(5368): 1412–1415.
- [115] Y. Tamaki, J. Itatani, Y. Nagata *et al.* “Highly Efficient, Phase-Matched High-Harmonic Generation by a Self-Guided Laser Beam”. *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 82: 1422–1425.
- [116] Y. Tamaki, Y. Nagata, M. Obara *et al.* “Phase-matched high-order-harmonic generation in a gas-filled hollow fiber”. *Phys. Rev. A*, **1999**, 59: 4041–4044.
- [117] E. Takahashi, Y. Nabekawa and K. Midorikawa. “Generation of 10- μJ coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics”. *Opt. Lett.* **2002**, 27(21): 1920–1922.
- [118] M. Schnürer, Z. Cheng, M. Hentschel *et al.* “Absorption-Limited Generation of Coherent Ultrashort Soft-X-Ray Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83: 722–725.
- [119] A. Paul, R. Bartels, R. Tobey *et al.* “Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light”. *Nature*, **2003**, 421(6918): 51–54.
- [120] E. Gibson, A. Paul, N. Wagner *et al.* “Coherent Soft X-ray Generation in the Water Window with Quasi-Phase Matching”. *Science*, **2003**, 302(5642): 95–98.

- [121] B. Sheehy, J. D. D. Martin, L. F. DiMauro *et al.* “High Harmonic Generation at Long Wavelengths”. *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83: 5270–5273.
- [122] Bing Shan and Zenghu Chang. “Dramatic extension of the high-order harmonic cutoff by using a long-wavelength driving field”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 65: 011804(R).
- [123] Hui Xiong, Han Xu, Yuxi Fu *et al.* “Generation of a coherent x ray in the water window region at 1 kHz repetition rate using a mid-infrared pump source”. *Opt. Lett.* **2009**, 34(11): 1747–1749.
- [124] J. Tate, T. Augustine, H. G. Muller *et al.* “Scaling of Wave-Packet Dynamics in an Intense Midinfrared Field”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98: 013901.
- [125] K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson *et al.* “Quantum Path Interference in the Wavelength Dependence of High-Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 99: 253903.
- [126] M. V. Frolov, N. L. Manakov and Anthony F. Starace. “Wavelength Scaling of High-Harmonic Yield: Threshold Phenomena and Bound State Symmetry Dependence”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 173001.
- [127] A. D. Shiner, C. Trallero-Herrero, N. Kajumba *et al.* “Wavelength Scaling of High Harmonic Generation Efficiency”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 103: 073902.
- [128] Lixin He, Zhe Wang, Yang Li *et al.* “Wavelength dependence of high-order-harmonic yield in inhomogeneous fields”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 88: 053404.
- [129] Anh-Thu Le, Hui Wei, Cheng Jin *et al.* “Universality of Returning Electron Wave Packet in High-Order Harmonic Generation with Midinfrared Laser Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 113: 033001.
- [130] T. Brabec, M. Yu. Ivanov and P. B. Corkum. “Coulomb focusing in intense field atomic processes”. *Phys. Rev. A*, **1996**, 54: R2551–R2554.
- [131] A. Gordon, R. Santra and F. X. Kärtner. “Role of the Coulomb singularity in high-order harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **2005**, 72: 063411.
- [132] D. Shafir, B. Fabre, J. Higuette *et al.* “Role of the Ionic Potential in High Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 108: 203001.
- [133] Xiaosong Zhu, Meiyang Qin, Qingbin Zhang *et al.* “Role of the Coulomb potential on the ellipticity in atomic high-order harmonics generation”. *Opt. Express*, **2012**, 20(15): 16275–16284.

- [134] K. Y. Huang, Q. Z. Xia and L. B. Fu. “Survival window for atomic tunneling ionization with elliptically polarized laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 87: 033415.
- [135] X. Lai, C. Wang, Y. Chen *et al.* “Elliptical Polarization Favors Long Quantum Orbits in High-Order Above-Threshold Ionization of Noble Gases”. *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 110: 043002.
- [136] MingYan Wu, YanLan Wang, XiaoJun Liu *et al.* “Coulomb-potential effects in non-sequential double ionization under elliptical polarization”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 87: 013431.
- [137] J. Wu, M. Meckel, S. Voss *et al.* “Coulomb Asymmetry in Strong Field Multielectron Ionization of Diatomic Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 108: 043002.
- [138] Min Li, Yunquan Liu, Hong Liu *et al.* “Subcycle dynamics of Coulomb asymmetry in strong elliptical laser fields.” *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 111: 023006.
- [139] Jizhou Yu, Xufei Sun, Yun Shao *et al.* “Retrieving the ionization dynamics of high-energy photoelectrons in elliptically polarized laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 043411.
- [140] Jingtao Zhang and T. Nakajima. “Coulomb effects in photoionization of H atoms irradiated by intense laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2007**, 75: 043403.
- [141] Zhangjin Chen, Toru Morishita, Anh-Thu Le *et al.* “Analysis of two-dimensional photoelectron momentum spectra and the effect of the long-range Coulomb potential in single ionization of atoms by intense lasers”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 053405.
- [142] P. L. He, N. Takemoto and F. He. “Photoelectron momentum distributions of atomic and molecular systems in strong circularly or elliptically polarized laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 063413.
- [143] Yun Shao, Peilun He, Ming-Ming Liu *et al.* “Fully differential study on dissociative ionization dynamics of deuteron molecules in strong elliptical laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2017**, 95: 031404(R).
- [144] Y. Liang, S. Augst, S. L. Chin *et al.* “High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses a comparison”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1994**, 27(20): 5119–5130.
- [145] C. Lyngå, A. L’Huillier and C-G Wahlström. “High-order harmonic generation in molecular gases”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1996**, 29(14): 3293–3302.

- [146] D. Fraser, M. Hutchinson, J. Marangos *et al.* “High harmonic generation in butane and butadiene”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1995**, 28(23): L739–L745.
- [147] N. Hay, R. Velotta, M. Mason *et al.* “High-order harmonic generation efficiency increased by controlled dissociation of molecular iodine”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2002**, 35(4): 1051–1060.
- [148] A. D. Bandrauk and N. H. Shon. “Attosecond control of ionization and high-order harmonic generation in molecules”. *Phys. Rev. A*, **2002**, 66: 031401(R).
- [149] D. Lappas and J. Marangos. “Orientation dependence of high-order harmonic generation in hydrogen molecular ions”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2000**, 33(21): 4679–4689.
- [150] R. Velotta, N. Hay, M. Mason *et al.* “High-Order Harmonic Generation in Aligned Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2001**, 87: 183901.
- [151] Xibin Zhou, R. Lock, N. Wagner *et al.* “Elliptically Polarized High-Order Harmonic Emission from Molecules in Linearly Polarized Laser Fields”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 102: 073902.
- [152] M. Lein, N. Hay, R. Velotta *et al.* “Interference effects in high-order harmonic generation with molecules”. *Phys. Rev. A*, **2002**, 66: 023805.
- [153] M. Lein, N. Hay, R. Velotta *et al.* “Role of the Intramolecular Phase in High-Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2002**, 88: 183903.
- [154] T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai. “Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules”. *Nature*, **2005**, 435(7041): 470–474.
- [155] Xibin Zhou, R. Lock, Wen Li *et al.* “Molecular recollision interferometry in high harmonic generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 073902.
- [156] C. Vozzi, F. Calegari, E. Benedetti *et al.* “Controlling Two-Center Interference in Molecular High Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 95: 153902.
- [157] Meiyang Qin, Xiaosong Zhu, Yang Li *et al.* “Interference of high-order harmonics generated from molecules at different alignment angles”. *Phys. Rev. A*, **2014**, 89: 013410.
- [158] C. Vozzi, M. Negro, F. Calegari *et al.* “Generalized molecular orbital tomography”. *Nat. Phys.* **2011**, 7(10): 822–826.

- [159] O. Smirnova, S. Patchkovskii, Y. Mairesse *et al.* “Attosecond Circular Dichroism Spectroscopy of Polyatomic Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 102: 063601.
- [160] P. M. Kraus, S. B. Zhang, A. Gijsbertsen *et al.* “High-Harmonic Probing of Electronic Coherence in Dynamically Aligned Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 111: 243005.
- [161] Xiao Xin Zhou, X. M. Tong, Z. X. Zhao *et al.* “Role of molecular orbital symmetry on the alignment dependence of high-order harmonic generation with molecules”. *Phys. Rev. A*, **2005**, 71: 061801(R).
- [162] A. T. Le, X. M. Tong and C. D. Lin. “Evidence of two-center interference in high-order harmonic generation from CO_2 ”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 73: 041402(R).
- [163] X. B. Bian and A. D. Bandrauk. “Orientation dependence of nonadiabatic molecular high-order-harmonic generation from resonant polar molecules”. *Phys. Rev. A*, **2012**, 86: 053417.
- [164] T. Zuo, S. Chelkowski and A. D. Bandrauk. “Harmonic generation by the H_2^+ molecular ion in intense laser fields”. *Phys. Rev. A*, **1993**, 48: 3837–3844.
- [165] K. J. Yuan and A. D. Bandrauk. “Circularly polarized molecular high-order harmonic generation in H_2^+ with intense laser pulses and static fields”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 83: 063422.
- [166] M. Lein. “Attosecond Probing of Vibrational Dynamics with High-Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 94: 053004.
- [167] S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth *et al.* “Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale”. *Science*, **2006**, 312(5772): 424–427.
- [168] X. B. Bian and A. D. Bandrauk. “Probing Nuclear Motion by Frequency Modulation of Molecular High-Order Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 113: 193901.
- [169] Weixing Qu, Zhaoyang Chen, Zhizhan Xu *et al.* “Nuclear correlation in ionization and harmonic generation of H_2^+ in short intense laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 65: 013402.
- [170] Xiaolong Yuan, Pengfei Wei, Candong Liu *et al.* “Effect of nuclear motion on spectral broadening of high-order harmonic generation”. *Opt. Express*, **2016**, 24(8): 8194–8201.
- [171] T. Bredtmann, S. Chelkowski and A. D. Bandrauk. “Monitoring attosecond dynamics of coherent electron-nuclear wave packets by molecular high-order-harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 84: 021401(R).

- [172] Jun Zhang, Xin-Lei Ge, Tian Wang *et al.* “Spatial distribution on high-order harmonic generation of an H_2^+ molecule in intense laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 063844.
- [173] Candong Liu, Zhinan Zeng, Pengfei Wei *et al.* “Driving-laser wavelength dependence of high-order harmonic generation in H_2^+ molecules”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 81: 033426.
- [174] M. Lara-Astiaso, R. E. F. Silva, A. Gubaydullin *et al.* “Enhancing High-Order Harmonic Generation in Light Molecules by Using Chirped Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2016**, 117: 093003.
- [175] M. Kreibich T. and Lein, V. Engel and E. K. U. Gross. “Even-Harmonic Generation due to Beyond-Born-Oppenheimer Dynamics”. *Phys. Rev. Lett.* **2001**, 87: 103901.
- [176] X. Y. Miao and H. N. Du. “Theoretical study of high-order-harmonic generation from asymmetric diatomic molecules”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 87: 053403.
- [177] X. B. Bian and A. D. Bandrauk. “Multichannel Molecular High-Order Harmonic Generation from Asymmetric Diatomic Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 105: 093903.
- [178] S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu *et al.* “Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets”. *Nat. Phys.* **2010**, 6(3): 200–206.
- [179] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii *et al.* “High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules”. *Nature*, **2009**, 406(7258): 972–977.
- [180] Wen Li, Xibin Zhou, R. Lock *et al.* “Time-resolved dynamics in N_2O_4 probed using high harmonic generation”. *Science*, **2008**, 322(5905): 1207–1211.
- [181] R. Torres, N. Kajumba, J. G. Underwood *et al.* “Probing Orbital Structure of Polyatomic Molecules by High-Order Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98: 203007.
- [182] O. Smirnova, A. S. Mouritzen, S. Patchkovskii *et al.* “Coulomb-laser coupling in laser-assisted photoionization and molecular tomography”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2007**, 40(13): F197–F206.
- [183] S. Patchkovskii, Z. X. Zhao, T. Brabec *et al.* “High harmonic generation and molecular orbital tomography in multielectron systems”. *J. Chem. Phys.* **2007**, 126: 114306.
- [184] Chunyang Zhai, Lixin He, Pengfei Lan *et al.* “Coulomb-corrected molecular orbital tomography of nitrogen”. *Sci. Rep.* **2016**, 6: 23236–23242.
- [185] Y. J. Chen, L. B. Fu and J. Liu. “Asymmetric Molecular Imaging through Decoding Odd-Even High-Order Harmonics”. *Phys. Rev. Lett.* **2013**, 111: 073902.

- [186] Gy. Farkas, Cs. Tóth, S. D. Moustazis *et al.* “*Observation of multiple-harmonic radiation induced from a gold surface by picosecond neodymium-doped yttrium aluminum garnet laser pulses*”. *Phys. Rev. A*, **1992**, 46: R3605–R3608.
- [187] D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke *et al.* “*Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses*”. *Phys. Rev. A*, **1995**, 52: R25–R27.
- [188] P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustazis *et al.* “*Efficient Extreme UV Harmonics Generated from Picosecond Laser Pulse Interactions with Solid Targets*”. *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 76: 1832–1835.
- [189] Alan H. Chin, Oscar G. Calderón and Junichiro Kono. “*Extreme Midinfrared Nonlinear Optics in Semiconductors*”. *Phys. Rev. Lett.* **2001**, 86: 3292–3295.
- [190] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk *et al.* “*Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal*”. *Nat. Phys.* **2011**, 7(2): 138–141.
- [191] F. Bloch. “*Über die Quantenmechanik der Electronen in Kristallgittern*”. *Z. Phys.* **1929**, 52(7): 555–600.
- [192] R. L. Kronig and W. G. Penney. “*Quantum Mechanics of Electrons in Crystal Lattices*”. *Proc. R. Soc. A*, **1931**, 130(814): 499–513.
- [193] F. H. M. Faisal and J. Z. Kamiński. “*Floquet-Bloch theory of high-harmonic generation in periodic structures*”. *Phys. Rev. A*, **1997**, 56: 748–762.
- [194] D. Golde, T. Meier and S. W. Koch. “*High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband excitations*”. *Phys. Rev. B*, **2008**, 77: 075330.
- [195] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer *et al.* “*Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations*”. *Nat. Photonics*, **2014**, 8(2): 119–123.
- [196] T. T. Luu, M. Garg, S. Yu. Kruchinin *et al.* “*Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids*”. *Nature*, **2015**, 521(7553): 498–502.
- [197] F. H. M. Faisal and J. Z. Kamiński. “*Generation and control of high harmonics by laser interaction with transmission electrons in a thin crystal*”. *Phys. Rev. A*, **1996**, 54: R1769–R1772.
- [198] M. X. Wu, S. Ghimire, D. A. Reis *et al.* “*High harmonic generation from Bloch electrons in solids*”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 043839.

- [199] S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa *et al.* “Two-Color Phase Control in Tunneling Ionization and Harmonic Generation by a Strong Laser Field and Its Third Harmonic”. *Phys. Rev. Lett.* **1994**, 73: 2692–2695.
- [200] X. M. Tong and Shih-I Chu. “Generation of circularly polarized multiple high-order harmonic emission from two-color crossed laser beams”. *Phys. Rev. A*, **1998**, 58: R2656–R2659.
- [201] E. Skantzakis, S. Chatziathanasiou, P. A. Carpeggiani *et al.* “Polarization shaping of high-order harmonics in laser-aligned molecules”. *Sci. Rep.* **2016**, 6: 39295–39301.
- [202] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré *et al.* “Linking high harmonics from gases and solids”. *Nature*, **2015**, 522(7557): 462–464.
- [203] Ivan P. Christov, J. Zhou, J. Peatross *et al.* “Nonadiabatic Effects in High-Harmonic Generation with Ultrashort Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 77: 1743–1746.
- [204] E. Priori, G. Cerullo, M. Nisoli *et al.* “Nonadiabatic three-dimensional model of high-order harmonic generation in the few-optical-cycle regime”. *Phys. Rev. A*, **2000**, 61: 063801.
- [205] Hongchuan Du, Shan Xue, Huiqiao Wang *et al.* “Nonadiabatic spectral redshift of high-order harmonics with the help of a VUV pulse”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 063844.
- [206] X. B. Bian and A. D. Bandrauk. “Nonadiabatic molecular high-order harmonic generation from polar molecules: Spectral redshift”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 83: 041403(R).
- [207] M. Spanner, J. Mikosch, A. Gijsbertsen *et al.* “Multielectron effects and nonadiabatic electronic dynamics in above threshold ionization and high-harmonic generation”. *New J. Phys.* **2011**, 13(11): 093010–093026.
- [208] P. Salières, A. L’Huillier and M. Lewenstein. “Coherence Control of High-Order Harmonics”. *Phys. Rev. Lett.* **1995**, 74: 3776–3779.
- [209] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith *et al.* “Spatial Coherence Measurement of Soft X-Ray Radiation Produced by High Order Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 77: 4756–4759.
- [210] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi *et al.* “Temporal Coherence of Ultrashort High-Order Harmonic Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **1998**, 81: 297–300.
- [211] C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin *et al.* “Temporal coherence of high-order harmonics”. *Phys. Rev. A*, **1999**, 60: 4823–4830.

- [212] P. Salières, A. L’Huillier, P. Antoine *et al.* “Coherence Control of High-Order Harmonics”. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **1999**, 41(6): 83–142.
- [213] R. Bartels, A. Paul, H. Green *et al.* “Generation of Spatially Coherent Light at Extreme Ultraviolet Wavelengths”. *Science*, **2000**, 297(5580): 376–378.
- [214] B. S. Zhang, D. F. Gardner, M. D. Seaberg *et al.* “High contrast 3D imaging of surfaces near the wavelength limit using tabletop EUV ptychography”. *Ultramicroscopy*, **2015**, 158: 98–104.
- [215] D. F. Gardner, M. Tanksalvala, E. R. Shanblatt *et al.* “Subwavelength coherent imaging of periodic samples using a 13.5 nm tabletop high-harmonic light source”. *Nat. Photonics*, **2017**, 11: 259–263.
- [216] T. W. Hänsch. “A proposed sub-femtosecond pulse synthesizer using separate phase-locked laser oscillators”. *Opt. Commun.* **1990**, 80(1): 71–75.
- [217] S. E. Harris, J. J. Macklin and T. W. Hänsch. “Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation”. *Opt. Commun.* **1993**, 100(5-6): 487–490.
- [218] G. Farkas and C. Tóth. “Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases”. *Phys. Lett. A*, **1992**, 168(5-6): 447–450.
- [219] P. B. Corkum, N. H. Burnett and M. Y. Ivanov. “Subfemtosecond pulses”. *Opt. Lett.* **1994**, 19(22): 1870–1872.
- [220] M. Ivanov, P. B. Corkum, T. Zuo *et al.* “Routes to Control of Intense-Field Atomic Polarizability”. *Phys. Rev. Lett.* **1995**, 74: 2933–2936.
- [221] V. T. Platonenko and V. V. Strelkov. “Single attosecond soft-x-ray pulse generated with a limited laser beam”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1999**, 16(3): 435–440.
- [222] Ph. Antoine, A. L’Huillier and M. Lewenstein. “Attosecond Pulse Trains Using High-order Harmonics”. *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 77: 1234–1237.
- [223] Ivan. P. Christov, Margaret M. Murnane and Henry C. Kapteyn. “High-Harmonic Generation of Attosecond Pulses in the Single-Cycle Regime”. *Phys. Rev. Lett.* **1997**, 78: 1251–1254.
- [224] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann *et al.* “Attosecond metrology”. *Nature*, **2001**, 414(6863): 509–513.

- [225] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger *et al.* “*Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation.*” *Science*, **2001**, 292(5522): 1689–1692.
- [226] Y. Mairesse, A. De Bohan, L. J. Frasinski *et al.* “*Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays.*” *Science*, **2003**, 302(5650): 1540–1543.
- [227] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker *et al.* “*Atomic transient recorder*”. *Nature*, **2004**, 427(6977): 817–821.
- [228] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari *et al.* “*Isolated single-cycle attosecond pulses*”. *Science*, **2006**, 314(5798): 443–446.
- [229] D. H. Ko, K. T. Kim, J. Park *et al.* “*Attosecond chirp compensation over broadband high-order harmonics to generate near transform-limited 63 as pulses*”. *New J. Phys.* **2010**, 12(6): 063008.
- [230] M.-C. Chen, P. Arpin, T. Popmintchev *et al.* “*Bright, Coherent, Ultrafast Soft X-Ray Harmonics Spanning the Water Window from a Tabletop Light Source*”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 105: 173901.
- [231] K. Zhao, Q. Zhang, M. Chini *et al.* “*Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch*”. *Opt. Lett.* **2012**, 37(18): 3891–3893.
- [232] M. Kováčev, Y. Mairesse, E. Priori *et al.* “*Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating*”. *Eur. Phys. J. D*, **2003**, 26(1): 79–82.
- [233] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps *et al.* “*Time-gated high-order harmonic generation*”. *Phys. Rev. A*, **2003**, 68: 043804.
- [234] C. Altucci, R. Velotta, V. Tosa *et al.* “*Interplay between group-delay-dispersion-induced polarization gating and ionization to generate isolated attosecond pulses from multicycle lasers*”. *Opt. Lett.* **2010**, 35(16): 2798–2800.
- [235] M. Negro, C. Vozzi, F. Calegari *et al.* “*Polarization pulse shaping induced by impulsive molecular alignment in optical filamentation and application to high-order harmonic generation*”. *Opt. Lett.* **2010**, 35(9): 1350–1352.
- [236] T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel *et al.* “*Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field*”. *Opt. Lett.* **2006**, 31(7): 975–977.
- [237] W. Cao, P. Lu, P. Lan *et al.* “*Efficient isolated attosecond pulse generation from a multicycle two-color laser field*”. *Opt. Express*, **2007**, 15(2): 530–535.

- [238] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson *et al.* “Attosecond pulse trains generated using two color laser fields”. *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 97: 013001.
- [239] Zenghu Chang. “Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating”. *Phys. Rev. A*, **2007**, 76: 051403(R).
- [240] Hiroki Mashiko, Steve Gilbertson, Chengquan Li *et al.* “Double Optical Gating of High-Order Harmonic Generation with Carrier-Envelope Phase Stabilized Lasers”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 103906.
- [241] H. Mashiko, S. Gilbertson, M. Chini *et al.* “Extreme ultraviolet supercontinua supporting pulse durations of less than one atomic unit of time”. *Opt. Lett.* **2009**, 34(21): 3337–3339.
- [242] Ximao Feng, Steve Gilbertson, Hiroki Mashiko *et al.* “Generation of Isolated Attosecond Pulses with 20 to 28 Femtosecond Lasers”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 103: 183901.
- [243] T. Pfeifer, A. Jullien, M. J. Abel *et al.* “Generating coherent broadband continuum soft-x-ray radiation by attosecond ionization gating”. *Opt. Express*, **2007**, 15(25): 17120–17128.
- [244] M. J. Abel, T. Pfeifer, P. M. Nagel *et al.* “Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission”. *Chem. Phys.* **2009**, 366: 9–14.
- [245] I. Thomann, A. Bahabad, X. Liu *et al.* “Characterizing isolated attosecond pulses from hollow-core waveguides using multi-cycle driving pulses”. *Opt. Express*, **2009**, 17(6): 4611–4633.
- [246] Wei Cao, Peixiang Lu, Pengfei Lan *et al.* “Single-attosecond pulse generation with an intense multicycle driving pulse”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 063821.
- [247] F. Ferrari, F. Calegari, M. Lucchini *et al.* “High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields”. *Nat. Photonics*, **2010**, 4(12): 875–879.
- [248] Zhinan Zeng, Ya Cheng, Xiaohong Song *et al.* “Generation of an Extreme Ultraviolet Supercontinuum in a Two-Color Laser Field”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98: 203901.
- [249] C. Vozzi, F. Calegari, F. Frassetto *et al.* “Coherent continuum generation above 100 eV driven by an ir parametric source in a two-color scheme”. *Phys. Rev. A*, **2009**, 79: 033842.

- [250] E. J. Takahashi, Pengfei Lan, O. D. Mücke *et al.* “*Infrared Two-Color Multicycle Laser Field Synthesis for Generating an Intense Attosecond Pulse*”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 104: 233901.
- [251] Pengfei Lan, Peixiang Lu, Wei Cao *et al.* “*Single attosecond pulse generation from asymmetric molecules with a multicycle laser pulse*”. *Opt. Lett.* **2007**, 32(9): 1186–1188.
- [252] K. T. Kim, C. M. Zhang, T. Ruchon *et al.* “*Photonic streaking of attosecond pulse trains*”. *Nat. Photonics*, **2013**, 7(8): 651–656.
- [253] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis *et al.* “*Direct observation of attosecond light bunching*”. *Nature*, **2003**, 426(6964): 267–271.
- [254] Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino *et al.* “*Interferometric autocorrelation of an attosecond pulse train in the single-cycle regime*”. *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 97: 153904.
- [255] Toshihiko Shimizu, Tomoya Okino, Kentaro Furusawa *et al.* “*Observation and analysis of an interferometric autocorrelation trace of an attosecond pulse train*”. *Phys. Rev. A*, **2007**, 75: 033817.
- [256] Y. Mairesse and F. Quéré. “*Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts*”. *Phys. Rev. A*, **2005**, 71: 011401(R).
- [257] D. J. Kane and R. Trebino. “*Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating*”. *IEEE J. Quantum Electron.* **1993**, 29(2): 571–579.
- [258] D. J. Kane, G. Rodriguez, A. J. Taylor *et al.* “*Simultaneous measurement of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram in a single shot*”. *J. Opt. Soc. Am. B*, **1997**, 14(4): 935–943.
- [259] C. Iaconis and I. A. Walmsley. “*Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*”. *Opt. Lett.* **1998**, 23(10): 792–794.
- [260] M. Chini, S. Gilbertson, S. D. Khan *et al.* “*Characterizing ultrabroadband attosecond lasers*”. *Opt. Express*, **2010**, 18(12): 13006–13016.
- [261] P. D. Keathley, S. Bhardwaj, J. Moses *et al.* “*Volkov transform generalized projection algorithm for attosecond pulse characterization*”. *New J. Phys.* **2016**, 18(7): 073009.
- [262] Xi Zhao, Hui Wei, Yan Wu *et al.* “*Phase-retrieval algorithm for the characterization of broadband single attosecond pulses*”. *Phys. Rev. A*, **2017**, 95: 043407.

- [263] M. Chini, K. Zhao and Z. Chang. “The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses”. *Nat. Photonics*, **2014**, 8(27): 178–186.
- [264] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger *et al.* “Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy”. *Nature*, **2002**, 419(6909): 803–807.
- [265] A. L. Cavalieri, N. Müller, T. Uphues *et al.* “Attosecond spectroscopy in condensed matter”. *Nature*, **2007**, 449(7165): 1029–1032.
- [266] J. Mauritsson, T. Remetter, M. Swoboda *et al.* “Attosecond Electron Spectroscopy Using a Novel Interferometric Pump-Probe Technique”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 105: 053001.
- [267] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze *et al.* “Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms”. *Nature*, **2007**, 446(7136): 627–632.
- [268] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin *et al.* “Attosecond Spectral Shearing Interferometry”. *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 90: 073902.
- [269] T. Remetter, P. Johnsson, J. Mauritsson *et al.* “Attosecond electron wave packet interferometry”. *Nat. Phys.* **2006**, 2(5).
- [270] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Mansten *et al.* “Coherent electron scattering captured by an attosecond quantum stroboscope”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 073003.
- [271] Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino *et al.* “Sub-10-fs control of dissociation pathways in the hydrogen molecular ion with a few-pulse attosecond pulse train”. *Nat. Commun.* **2016**, 7: 12835.
- [272] K. J. Schafer, M. B. Gaarde, A. Heinrich *et al.* “Strong Field Quantum Path Control Using Attosecond Pulse Trains”. *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 92: 023003.
- [273] J. Biegert, A. Heinrich, C. P. Hauri *et al.* “Control of high-order harmonic generation using attosecond pulse trains”. *J. Mod. Optic.* **2006**, 53(1-2): 87–96.
- [274] C. Figueira de Morisson Faria, P. Salières, P. Villain *et al.* “Controlling high-order harmonic generation and above-threshold ionization with an attosecond-pulse train”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 053416.
- [275] H. Soifer, P. Botheron, D. Shafir *et al.* “Near-Threshold High-Order Harmonic Spectroscopy with Aligned Molecules”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 105: 143904.

- [276] P. M. Abanador, F. Mauger, K. Lopata *et al.* “Semiclassical modeling of high-order harmonic generation driven by an elliptically polarized laser field: the role of recolliding periodic orbits”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2017**, 50(3): 035601.
- [277] Wei-Hao Xiong, Xiang-Ru Xiao, Liang-You Peng *et al.* “Correspondence of below-threshold high-order-harmonic generation and frustrated tunneling ionization”. *Phys. Rev. A*, **2016**, 94: 013417.
- [278] J. Gao, F. Shen and J. G. Eden. “Quantum Electrodynamical Treatment of Harmonic Generation in Intense Optical Fields”. *Phys. Rev. Lett.* **1998**, 81: 1833–1836.
- [279] Lianghai Gao, Xiaofeng Li, Panming Fu *et al.* “Nonperturbative quantum electrodynamics theory of high-order harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **2000**, 61: 063407.
- [280] Huayu Hu and Jianmin Yuan. “Survival window for atomic tunneling ionization with elliptically polarized laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2008**, 78: 063826.
- [281] Jingtao Zhang, Yan Wu, Zhinan Zeng *et al.* “Intensity-dependent multiorbital effect in high-order harmonics generated from aligned O_2 molecules”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 88: 033826.
- [282] Chao Yu, Jingtao Zhang, Zhi-Wei Sun *et al.* “A nonperturbative quantum electrodynamic approach to the theory of laser induced high harmonic generation”. *Front. Phys.* **2015**, 10(4): 1–6.
- [283] E. Schrödinger. “Quantization as an Eigenvalue Problem”. *Ann. Phys.* **1926**, 384(4): 361–376.
- [284] F. He, C. Ruiz, A. Becker *et al.* “Attosecond probing of instantaneous AC Stark shifts in helium atoms”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2011**, 44(21): 211001.
- [285] M. Chini, B. Zhao, H. Wang *et al.* “Subcycle ac Stark Shift of Helium Excited States Probed with Isolated Attosecond Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 109: 073601.
- [286] J. Crank and P. Nicholson. “A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat-conduction type”. In: *Math. Proc. Camb. Phil. Soc.* **1947**: 50–67.
- [287] R. Loudon. “One-dimensional hydrogen atom”. *Am. J. Phys.* **1959**, 27: 649–655.
- [288] Q. Su and J. H. Eberly. “Model atom for multiphoton physics”. *Phys. Rev. A*, **1991**, 44: 5997–6008.

- [289] J. C. Wells, I. Simbotin and M. Gavrilă. “Physical Reality of Light-Induced Atomic States”. *Phys. Rev. Lett.* **1998**, *80*: 3479–3482.
- [290] C. Figueira de Morisson Faria, D. B. Milošević and G. G. Paulus. “Phase-dependent effects in bichromatic high-order harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **2000**, *61*: 063415.
- [291] Joseph Wassaf, Valérie Vénier, Richard Taïeb *et al.* “Roles of resonances and recollisions in strong-field atomic phenomena: Above-threshold ionization”. *Phys. Rev. A*, **2003**, *67*: 053405.
- [292] K. Wódkiewicz. “Fermi pseudopotential in arbitrary dimensions”. *Phys. Rev. A*, **1991**, *43*: 68–76.
- [293] W. Becker, S. Long and J. K. McIver. “Modeling harmonic generation by a zero-range potential”. *Phys. Rev. A*, **1994**, *50*: 1540–1560.
- [294] Zhaoyan Zhou, Dongwen Zhang, Zengxiu Zhao *et al.* “Terahertz emission of atoms driven by ultrashort laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **2009**, *79*: 063413.
- [295] F. H. M. Faisal. “Multiple absorption of laser photons by atoms”. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **1973**, *6*(4): L89–L92.
- [296] H. R. Reiss. “Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system”. *Phys. Rev. A*, **1980**, *22*: 1786–1813.
- [297] M. Lewenstein, K. C. Kulander, K. J. Schafer *et al.* “Rings in above-threshold ionization: A quasiclassical analysis”. *Phys. Rev. A*, **1995**, *51*: 1495–1507.
- [298] Potvliege R. M. and R. Shakeshaft. “Multiphoton processes in an intense laser field: Harmonic generation and total ionization rates for atomic hydrogen”. *Phys. Rev. A*, **1989**, *40*: 3061–3079.
- [299] J. H. Shirley. “Solution of the Schrödinger Equation with a Hamiltonian Periodic in Time”. *Phys. Rev.* **1965**, *138*(4B): 979–987.
- [300] M. Gavrilă and J. Z. Kamiński. “Free-Free Transitions in Intense High-Frequency Laser Fields”. *Phys. Rev. Lett.* **1984**, *52*: 613–616.
- [301] Walter C. Henneberger. “Perturbation Method for Atoms in Intense Light Beams”. *Phys. Rev. Lett.* **1968**, *21*: 838–841.
- [302] P. G. Burke, P. Francken and C. J. Joachain. “R-matrix-Floquet theory of multiphoton processes”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1991**, *24*(4): 761–790.

- [303] R. Gebarowski, P. G. Burke, K. T. Taylor *et al.* “*R-matrix-Floquet theory of multiphoton processes: X. Theory of harmonic generation*”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1997**, 30(7): 1837–1846.
- [304] P. Hohenberg and W. Kohn. “*Inhomogeneous Electron Gas*”. *Phys. Rev.* **1964**, 136: B864–B871.
- [305] W. Kohn and L. J. Sham. “*Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects*”. *Phys. Rev.* **1965**, 140: A1133–A1138.
- [306] Erich Runge and E. K. U. Gross. “*Density-Functional Theory for Time-Dependent Systems*”. *Phys. Rev. Lett.* **1984**, 52: 997–1000.
- [307] X. M. Tong and Shih-I Chu. “*Time-dependent density-functional theory for strong-field multiphoton processes: Application to the study of the role of dynamical electron correlation in multiple high-order harmonic generation*”. *Phys. Rev. A*, **1998**, 57: 452–461.
- [308] Xi Chu and Shih-I Chu. “*Time-dependent density-functional theory for molecular processes in strong fields: Study of multiphoton processes and dynamical response of individual valence electrons of N_2 in intense laser fields*”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 64: 063404.
- [309] Nicolas Tancogne-Dejean, Oliver D. Mücke, Franz X. Kärtner *et al.* “*Impact of the Electronic Band Structure in High-Harmonic Generation Spectra of Solids*”. *Phys. Rev. Lett.* **2017**, 118: 087403.
- [310] A. L’Huillier, P. Balcou, S. Candel *et al.* “*Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm*”. *Phys. Rev. A*, **1992**, 46: 2778–2790.
- [311] P. Balcou, P. Salieres, A. L’Huillier *et al.* “*Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces*”. *Phys. Rev. A*, **1997**, 55: 3204–3210.
- [312] Ivan P. Christov. “*Enhanced generation of attosecond pulses in dispersion-controlled hollow-core fiber*”. *Phys. Rev. A*, **1999**, 60: 3244–3250.
- [313] M. Geissler, G. Tempea, A. Scrinzi *et al.* “*Light Propagation in Field-Ionizing Media: Extreme Nonlinear Optics*”. *Phys. Rev. Lett.* **1999**, 83: 2930–2933.
- [314] N. H. Shon, A. Suda, Y. Tamaki *et al.* “*High-order harmonic and attosecond pulse generations: Bulk media versus hollow waveguides*”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 63: 063806.
- [315] N. Milosevic, A. Scrinzi and T. Brabec. “*Numerical Characterization of High Harmonic Attosecond Pulses*”. *Phys. Rev. Lett.* **2002**, 88: 093905.

- [316] A. T. Le, R. R. Lucchese, S. Tonzani *et al.* “Quantitative rescattering theory for high-order harmonic generation from molecules”. *Phys. Rev. A*, **2009**, 80: 013401.
- [317] A. T. Le, T. Morishita and C. D. Lin. “Extraction of the species-dependent dipole amplitude and phase from high-order harmonic spectra in rare-gas atoms”. *Phys. Rev. A*, **2008**, 78: 023814.
- [318] Cheng Jin, Anh-Thu Le and C. D. Lin. “Retrieval of target photorecombination cross sections from high-order harmonics generated in a macroscopic medium”. *Phys. Rev. A*, **2009**, 79: 053413.
- [319] Cheng Jin, Anh-Thu Le and C. D. Lin. “Medium propagation effects in high-order harmonic generation of Ar and N₂”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 83: 023411.
- [320] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall *et al.* “Self-focusing and guiding of short laser pulses in ionizing gases and plasmas”. *IEEE J. Quantum Electron.* **1997**, 33(11): 1879–1914.
- [321] Ph. Antoine, A. L’Huillier, M. Lewenstein *et al.* “Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field”. *Phys. Rev. A*, **1996**, 53: 1725–1745.
- [322] E. Takahashi, V. Tosa, Y. Nabekawa *et al.* “Experimental and theoretical analyses of a correlation between pump-pulse propagation and harmonic yield in a long-interaction medium”. *Phys. Rev. A*, **2003**, 68: 023808.
- [323] M. Lucchini, F. Calegari, K. Kim *et al.* “Nonadiabatic quantum path analysis of the high-order harmonic generation in a highly ionized medium”. *New J. Phys.* **2012**, 14(3): 033009.
- [324] Mette B. Gaarde, Mitsuko Murakami and Reinhard Kienberger. “Spatial separation of large dynamical blueshift and harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 053401.
- [325] K. Schiessl, E. Persson, A. Scrinzi *et al.* “Enhancement of high-order harmonic generation by a two-color field: Influence of propagation effects”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 74: 053412.
- [326] Hongchuan Du and Bitao Hu. “Propagation effects of isolated attosecond pulse generation with a multicycle chirped and chirped-free two-color field”. *Phys. Rev. A*, **2011**, 84: 023817.
- [327] J. Luo, Y. Li, Z. Wang *et al.* “Ultra-short isolated attosecond emission in mid-infrared inhomogeneous fields without CEP stabilization”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2013**, 46(14): 145602.

- [328] R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker *et al.* “Steering attosecond electron wave packets with light”. *Science*, **2002**, 297(5584): 1144–1148.
- [329] A. Scrinzi, M. Y. Ivanov, R. Kienberger *et al.* “Attosecond physics”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2006**, 39(1): R1–R37.
- [330] K. Ueda and K. L. Ishikawa. “Attoclocks play devil’s advocate”. *Nat. Phys.* **2011**, 7: 371–372.
- [331] C. Huang, P. Lan, Y. Zhou *et al.* “Tunneling site of electrons in strong-field-enhanced ionization of molecules”. *Phys. Rev. A*, **2014**, 90: 043420.
- [332] A. S. Landsman and U. Keller. “Attosecond science and the tunnelling time problem”. *Phys. Rep.* **2015**, 547: 1–24.
- [333] A. Blättermann, C.-T. Chiang and W. Widdra. “Atomic line emission and high-order harmonic generation in argon”. *Phys. Rev. A*, **2014**, 89: 043404.
- [334] X. Zhu, X. Liu, Y. Li *et al.* “Molecular high-order-harmonic generation due to the recollision mechanism by a circularly polarized laser pulse”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 043418.
- [335] A. F. Kemper, B. Moritz, J. K. Freericks *et al.* “Theoretical description of high-order harmonic generation in solids”. *New J. Phys.* **2013**, 15(2): 023003.
- [336] F. Mauger, A. D. Bandrauk, A. Kamor *et al.* “Quantum-classical correspondence in circularly polarized high harmonic generation”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2014**, 47(4): 041001.
- [337] W. Cao, P. Lu, P. Lan *et al.* “Control of quantum paths in high-order harmonic generation via a $\omega + 3\omega$ bichromatic laser field”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2007**, 40(5): 869–875.
- [338] D. B. Milošević. “High-order harmonic generation by a bichromatic elliptically polarized field: Conservation of angular momentum”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2015**, 48(17): 171001.
- [339] D. C. Yost, T. R. Schibli, J. Ye *et al.* “Vacuum-ultraviolet frequency combs from below-threshold harmonics”. *Nat. Phys.* **2009**, 5(11): 815–820.
- [340] E. P. Power, A. M. March, F. Catoire *et al.* “XFROG phase measurement of threshold harmonics in a Keldysh-scaled system”. *Nat. Photonics*, **2010**, 4(6): 352–356.

- [341] A. L’Huillier, K. J. Schafer and K. C. Kulander. “*Theoretical aspects of intense field harmonic generation*”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1991**, 24(15): 3315–3341.
- [342] J. A. Hostetter, J. L. Tate, K. J. Schafer *et al.* “*Semiclassical approaches to below-threshold harmonics*”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 82: 023401.
- [343] M. Chini, X. Wang, Y. Cheng *et al.* “*Coherent phase-matched VUV generation by field-controlled bound states*”. *Nat. Photonics*, **2014**, 8(6): 437–441.
- [344] W.-H. Xiong, J.-W. Geng, J.-Y. Tang *et al.* “*Mechanisms of below-threshold harmonic generation in atoms*”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 112: 233001.
- [345] A. Zair, M. Holler, A. Guandalini *et al.* “*Quantum path interferences in high-order harmonic generation*”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, 100: 143902.
- [346] L. He, P. Lan, C. Zhai *et al.* “*Quantum path interference in the wavelength-dependent below-threshold harmonic generation*”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 023428.
- [347] S. Camp, K. J. Schafer and M. B. Gaarde. “*Interplay between resonant enhancement and quantum path dynamics in harmonic generation in helium*”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 013404.
- [348] P.-C. Li, Y.-L. Sheu, C. Laughlin *et al.* “*Role of laser-driven electron-multirescattering in resonance-enhanced below-threshold harmonic generation in He atoms*”. *Phys. Rev. A*, **2014**, 90: 041401(R).
- [349] P.-C. Li, Y.-L. Sheu, C. Laughlin *et al.* “*Dynamical origin of near-and below-threshold harmonic generation of Cs in an intense mid-infrared laser field*”. *Nat. Commun.* **2015**, 6: 7178.
- [350] K. N. Avanaki, D. A. Telnov, H. Z. Jooya *et al.* “*Generation of below-threshold even harmonics by a stretched H_2^+ molecular ion in intense linearly and circularly polarized laser fields*”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 063811.
- [351] F. Dong, Y. Tian, S. Yu *et al.* “*Polarization properties of below-threshold harmonics from aligned molecules H_2^+ in linearly polarized laser fields*”. *Opt. Express*, **2015**, 23(14): 18106–18116.
- [352] F. Brizuela, C. M. Heyl, P. Rudawski *et al.* “*Efficient high-order harmonic generation boosted by below-threshold harmonics*”. *Sci. Rep.* **2013**, 3: 1410.
- [353] M. Li, L. Qin, C. Wu *et al.* “*Rescattering and frustrated tunneling ionization of atoms in circularly polarized laser fields*”. *Phys. Rev. A*, **2014**, 89: 013422.

- [354] V. S. Yakovlev and A. Scrinzi. “High harmonic imaging of few-cycle laser pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2003**, *91*: 153901.
- [355] Z.-H. Loh, M. Khalil, R. E. Correa *et al.* “Quantum State-Resolved Probing of Strong-Field-Ionized Xenon Atoms Using Femtosecond High-Order Harmonic Transient Absorption Spectroscopy”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, *98*: 143601.
- [356] E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth *et al.* “Real-time observation of valence electron motion”. *Nature*, **2010**, *466*(7307): 739–743.
- [357] H. Wang, M. Chini, S. Y. Chen *et al.* “Attosecond Time-Resolved Autoionization of Argon”. *Phys. Rev. Lett.* **2010**, *105*: 143002.
- [358] U. Fano. “Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts”. *Phys. Rev.* **1961**, *124*(6): 1866–1878.
- [359] U. Fano and J. W. Cooper. “Spectral distribution of atomic oscillator strengths”. *Rev. Mod. Phys.* **1968**, *40*(3): 441–507.
- [360] J. A. Simpson and U. Fano. “Classification of Resonances in the Electron Scattering Cross Section of Ne and He”. *Phys. Rev. Lett.* **1963**, *11*: 158–159.
- [361] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori *et al.* “Controlling the sign of quantum interference by tunnelling from quantum wells”. *Nature*, **1997**, *390*(6660): 589–591.
- [362] V. Madhavan, W. Chen, T. Jamneala *et al.* “Tunneling into a Single Magnetic Atom: Spectroscopic Evidence of the Kondo Resonance”. *Science*, **1998**, *280*(5363): 567–569.
- [363] Z. X. Zhao and C. D. Lin. “Theory of laser-assisted autoionization by attosecond light pulses”. *Phys. Rev. A*, **2005**, *71*: 060702(R).
- [364] M. Wickenhauser, J. Burgdörfer, F. Krausz *et al.* “Time Resolved Fano Resonances”. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, *94*: 023002.
- [365] Z. H. Loh, C. H. Greene and S. R. Leone. “Femtosecond induced transparency and absorption in the extreme ultraviolet by coherent coupling of the He $2s2p$ ($^1P^o$) and $2p^2$ ($^1S^e$ double excitation states with 800 nm light”. *Chem. Phys.* **2008**, *350*(1): 7–13.
- [366] Andreas Kaldun, Christian Ott, Alexander Blättermann *et al.* “Extracting Phase and Amplitude Modifications of Laser-Coupled Fano Resonances”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, *112*: 103001.

- [367] P. Ranitovic, X. M. Tong, C. W. Hogle *et al.* “Controlling the XUV Transparency of Helium Using Two-Pathway Quantum Interference”. *Phys. Rev. Lett.* **2011**, *106*: 193008.
- [368] C. Ott, A. Kaldun, P. Raith *et al.* “Lorentz meets Fano in spectral line shapes: a universal phase and its laser control”. *Science*, **2013**, *340*(6133): 716–720.
- [369] Z. Q. Yang, D. F. Ye, T. Ding *et al.* “Attosecond XUV absorption spectroscopy of doubly excited states in helium atoms dressed by a time-delayed femtosecond infrared laser”. *Phys. Rev. A*, **2015**, *91*: 013414.
- [370] W.-Y. Wu and F. He. “Asymmetric photoelectron momentum distribution driven by two-color XUV fields”. *Phys. Rev. A*, **2016**, *93*: 023415.
- [371] V. V. Strelkov, M. A. Khokhlova and N. Y. Shubin. “High-order harmonic generation and Fano resonances”. *Phys. Rev. A*, **2014**, *89*: 053833.
- [372] K. S. Budil, P. Salières, A. L’Huillier *et al.* “Influence of ellipticity on harmonic generation”. *Phys. Rev. A*, **1993**, *48*: R3437–R3440.
- [373] M. Möller, Y. Cheng, S. D. Khan *et al.* “Dependence of high-order-harmonic-generation yield on driving-laser ellipticity”. *Phys. Rev. A*, **2012**, *86*: 011401.
- [374] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro *et al.* “Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff”. *Phys. Rev. Lett.* **1993**, *70*: 1599–1602.
- [375] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri *et al.* “Attosecond control and measurement: lightwave electronics”. *Science*, **2007**, *317*(5839): 769–775.
- [376] P. B. Corkum and F. Krausz. “Attosecond science”. *Nat. Phys.* **2007**, *3*(6): 381–387.
- [377] T. Morishita, A. T. Le, Z. Chen *et al.* “Accurate Retrieval of Structural Information from Laser-Induced Photoelectron and High-Order Harmonic Spectra by Few-Cycle Laser Pulses”. *Phys. Rev. Lett.* **2008**, *100*: 013903.
- [378] H. J. Wörner, H. Niikura, J. B. Bertrand *et al.* “Observation of electronic structure minima in high-harmonic generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *102*: 103901.
- [379] P. Ackermann, H. Münch and T. Halfmann. “Resonantly-enhanced harmonic generation in Argon”. *Opt. Express*, **2012**, *20*(13): 13824–13832.
- [380] Y. Huang, C. Meng, X. Wang *et al.* “Joint measurements of terahertz wave generation and high-harmonic generation from aligned nitrogen molecules reveal angle-resolved molecular structures”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, *115*: 123002.

- [381] H. Yu and A. D. Bandrauk. “Three-dimensional Cartesian finite element method for the time dependent Schrödinger equation of molecules in laser fields”. *J. Chem. Phys.* **1995**, 102(3): 1257–1265.
- [382] R. Kopold, W. Becker and M. Kleber. “Model calculations of high-harmonic generation in molecular ions”. *Phys. Rev. A*, **1998**, 58: 4022–4038.
- [383] D. Cricchio and E. Fiordilino. “Harmonic generation from nanorings driven by a two-color laser field”. *Laser Phys. Lett.* **2014**, 11(6): 066002.
- [384] S. A. Sørngård, S. I. Simonsen and J. P. Hansen. “High-order harmonic generation from graphene: Strong attosecond pulses with arbitrary polarization”. *Phys. Rev. A*, **2013**, 87: 053803.
- [385] S. I. Simonsen, S. A. Sørngård, M. Førre *et al.* “High-order harmonic generation in graphene flakes exposed to circularly polarized femtosecond pulses”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2014**, 47(6): 065401.
- [386] I. Al-Naib, J. E. Sipe and M. M. Dignam. “High harmonic generation in undoped graphene: Interplay of inter- and intraband dynamics”. *Phys. Rev. B*, **2014**, 90: 245423.
- [387] R. Numico, D. Giulietti, A. Giulietti *et al.* “High-order harmonic generation from a linear chain of ions”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **2000**, 33(13): 2605–2615.
- [388] A. K. Gupta, O. E. Alon and N. Moiseyev. “Generation and control of high-order harmonics by the interaction of an infrared laser with a thin graphite layer”. *Phys. Rev. B*, **2003**, 68: 205101.
- [389] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk *et al.* “Generation and propagation of high-order harmonics in crystals”. *Phys. Rev. A*, **2012**, 85: 043836.
- [390] G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando *et al.* “Theoretical analysis of high-harmonic generation in solids”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 113: 073901.
- [391] C. R. McDonald, G. Vampa, P. B. Corkum *et al.* “Interband Bloch oscillation mechanism for high-harmonic generation in semiconductor crystals”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 033845.
- [392] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré *et al.* “All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, 115: 193603.
- [393] T. Higuchi, M. I. Stockman and P. Hommelhoff. “Strong-field perspective on high-harmonic radiation from bulk solids”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 113: 213901.

- [394] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert *et al.* “Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation”. *Nature*, **2015**, 523(7562): 572–575.
- [395] P. G. Hawkins, M. Y. Ivanov and V. S. Yakovlev. “Effect of multiple conduction bands on high-harmonic emission from dielectrics”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 91: 013405.
- [396] T. Tamaya, A. Ishikawa, T. Ogawa *et al.* “Diabatic Mechanisms of Higher-Order Harmonic Generation in Solid-State Materials under High-Intensity Electric Fields.” *Phys. Rev. Lett.* **2016**, 116: 016601.
- [397] Z. Guan, X.-X. Zhou and X.-B. Bian. “High-order-harmonic generation from periodic potentials driven by few-cycle laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **2016**, 93: 033852.
- [398] F. Catoire and H. Bachau. “Above-Threshold Ionization of Quasiperiodic Structures by Low-Frequency Laser Fields”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, 115: 163602.
- [399] W. Becker, A. Lohr and M. Kleber. “Effects of rescattering on above-threshold ionization”. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **1994**, 27(14): L325–L332.
- [400] A. Belsky, P. Martin, H. Bachau *et al.* “Heating of conduction band electrons by intense femtosecond laser pulses”. *Europhys. Lett.* **2004**, 67(2): 301–306.
- [401] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov *et al.* “Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films”. *Science*, **2004**, 306(5696): 666–669.
- [402] A. Gupta, T. Sakhivel and S. Seal. “Recent development in 2D materials beyond graphene”. *Prog. Mater. Sci.* **2015**, 73: 44–126.
- [403] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin *et al.* “Two-dimensional atomic crystals.” *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **2005**, 102(30): 10451–10453.
- [404] A. D. Bandrauk and Hengtai Yu. “High-order harmonic generation by one- and two-electron molecular ions with intense laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **1999**, 59: 539–548.
- [405] S. X. Hu and Z. Z. Xu. “Dynamics of an intense laser-driven multiwell system: A model of ionized clusters”. *Phys. Rev. A*, **1997**, 56: 3916–3922.
- [406] C. Zener. “A Theory of the Electrical Breakdown of Solid Dielectrics”. *Proc. R. Soc. A*, **1934**, 145(855): 523–529.
- [407] E. E. Mendez and G. Bastard. “Wannier-Stark Ladders and Bloch Oscillations in Superlattices”. *Phys. Today*, **1993**, 46(6): 34–42.

- [408] M. Glück, A. R. Kolovskya and H. J. Korsch. “Wannier-Stark resonances in optical and semiconductor superlattices”. *Phys. Rep.* **2002**, 366(3): 103–182.
- [409] H. Bachau, A. N. Belsky, P. Martin *et al.* “Electron heating in the conduction band of insulators irradiated by ultrashort laser pulses”. *Phys. Rev. B*, **2006**, 74: 235215.
- [410] A. N. Grum-Grzhimailo, B. Abeln, K. Bartschat *et al.* “Ionization of atomic hydrogen in strong infrared laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 81: 043408.
- [411] F. Catoire and H. Bachau. “Extraction of the absolute value of the photoelectron spectrum probability density by means of the resolvent technique”. *Phys. Rev. A*, **2012**, 85: 023422.
- [412] Panming Fu, Bingbing Wang, Xiaofeng Li *et al.* “Interrelation between high-order harmonic generation and above-threshold ionization”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 64: 063401.
- [413] D. B. Milošević. “Generation of elliptically polarized attosecond pulse trains”. *Opt. Lett.* **2015**, 40(10): 2381–2384.
- [414] L. Medišauskas, J. Wragg, H. van der Hart *et al.* “Generating Isolated Elliptically Polarized Attosecond Pulses Using Bichromatic Counterrotating Circularly Polarized Laser Fields”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, 115: 153001.
- [415] O. Travnikova, J.-C. Liu, A. Lindblad *et al.* “Circularly polarized x rays: another probe of ultrafast molecular decay dynamics.” *Phys. Rev. Lett.* **2010**, 105: 233001.
- [416] A. Ferré, C. Handschin, M. Dumergue *et al.* “A table-top ultrashort light source in the extreme ultraviolet for circular dichroism experiments”. *Nat. Photonics*, **2014**, 9(2): 93–98.
- [417] C. Liu, Y. Zheng, Z. Zeng *et al.* “Effect of elliptical polarization of driving field on high-order-harmonic generation in semiconductor ZnO”. *Phys. Rev. A*, **2016**, 93: 043806.
- [418] S.-K. Son, D. A. Telnov and S.-I. Chu. “Probing the origin of elliptical high-order harmonic generation from aligned molecules in linearly polarized laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 82: 043829.
- [419] X. M. Tong and S.-I. Chu. “Probing the spectral and temporal structures of high-order harmonic generation in intense laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **2000**, 61: 021802(R).
- [420] S. G. Yu, Y. L. Wang, X. Y. Lai *et al.* “Coulomb effect on photoelectron momentum distributions in orthogonal two-color laser fields”. *Phys. Rev. A*, **2016**, 94: 033418.

- [421] Y. Zhou, C. Huang, A. Tong *et al.* “Correlated electron dynamics in nonsequential double ionization by orthogonal two-color laser pulses”. *Opt. Express*, **2011**, 19(3): 2301–2308.
- [422] L. Zhang, X. H. Xie, S. Roither *et al.* “Subcycle Control of Electron-Electron Correlation in Double Ionization”. *Phys. Rev. Lett.* **2014**, 112: 193002.
- [423] Feng He. “Control of electron localization in the dissociation of H_2^+ using orthogonally polarized two-color sequential laser pulses”. *Phys. Rev. A*, **2012**, 86: 063415.
- [424] Ji-Wei Geng, Wei-Hao Xiong, Xiang-Ru Xiao *et al.* “Nonadiabatic Electron Dynamics in Orthogonal Two-Color Laser Fields with Comparable Intensities”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, 115: 193001.
- [425] Min Li, Ji-Wei Geng, Ming-Ming Liu *et al.* “Spatial-temporal control of interferences of multiple tunneling photoelectron wave packets”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 013416.
- [426] Martin Richter, Maksim Kunitski, Markus Schöffler *et al.* “Streaking Temporal Double-Slit Interference by an Orthogonal Two-Color Laser Field”. *Phys. Rev. Lett.* **2015**, 114: 143001.
- [427] E. Cormier and M. Lewenstein. “Optimizing the efficiency in high order harmonic generation optimization by two-color fields”. *Eur. Phys. J. D*, **2000**, 12: 227–233.
- [428] T. T. Liu, T. Kanai, T. Sekikawa *et al.* “Significant enhancement of high-order harmonics below 10 nm in a two-color laser field”. *Phys. Rev. A*, **2006**, 73: 063823.
- [429] D. B. Milošević and W. Sander. “Generation of elliptically polarized attosecond pulse trains”. *Opt. Lett.* **2000**, 25(20): 1532–1534.
- [430] E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa *et al.* “Dramatic Enhancement of High-Order Harmonic Generation”. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 99: 053904.
- [431] A. Fleischer and N. Moiseyev. “Amplification of high-order harmonics using weak perturbative high-frequency radiation”. *Phys. Rev. A*, **2008**, 77: 010102.
- [432] F. Calegari, C. Vozzi, M. Negro *et al.* “Efficient continuum generation exceeding 200 eV by intense ultrashort two-color driver”. *Opt. Lett.* **2009**, 34(20): 3125–3127.
- [433] D. Shafir, Y. Mairesse, D. M. Villeneuve *et al.* “Atomic wavefunctions probed through strong-field light-matter interaction”. *Nat. Phys.* **2009**, 5: 412–416.

- [434] P. Wei, J. Miao, Z. Zeng *et al.* “*Selective Enhancement of A Single Harmonic Emission in A Driving Laser Field with Subcycle Waveform Control*”. *Phys. Rev. Lett.* **2013**, *110*: 233903.
- [435] H. Merdji, T. Auguste, W. Boutu *et al.* “*Isolated Attosecond Pulses using a Detuned Second-harmonic Field*”. *Opt. Lett.* **2007**, *32*(21): 3134–3136.
- [436] Yongli Yu, Xiaohong Song, Yuxi Fu *et al.* “*Theoretical investigation of single attosecond pulse generation in an orthogonally polarized two-color laser field*”. *Opt. Express*, **2008**, *16*(2): 686–694.
- [437] Yinghui Zheng, Zhinan Zeng, Pu Zou *et al.* “*Dynamic Chirp Control and Pulse Compression for Attosecond High-Order Harmonic Emission*”. *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *103*: 043904.
- [438] Pu Zou, Zhinan Zeng, Yinghui Zheng *et al.* “*Coherent control of broadband isolated attosecond pulses in a chirped two-color laser field*”. *Phys. Rev. A*, **2010**, *81*: 033428.
- [439] Michael D. Perry and John K. Crane. “*High-order harmonic emission from mixed fields*”. *Phys. Rev. A*, **1993**, *48*: R4051–R4054.
- [440] H. Eichmann, A. Egbert, S. Nolte *et al.* “*Polarization-dependent high-order two-color mixing*”. *Phys. Rev. A*, **1995**, *51*: R3414–R3417.
- [441] N. Dudovich, O. Smirnova, J. Levesque *et al.* “*Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses*”. *Nat. Phys.* **2006**, *2*(11): 781–786.
- [442] Pengfei Lan, Marc Ruhmann, Lixin He *et al.* “*Attosecond Probing of Nuclear Dynamics with Trajectory-Resolved High-Harmonic Spectroscopy*”. *Phys. Rev. Lett.* **2017**, *119*: 033201.
- [443] L. Brugnera, D. J. Hoffmann, T. Siegel *et al.* “*Trajectory Selection in High Harmonic Generation by Controlling the Phase between Orthogonal Two-color Fields*”. *Phys. Rev. Lett.* **2011**, *107*: 153902.
- [444] C. Hutchison, S. Houver, N. Lin *et al.* “*Electron trajectory control of odd and even order harmonics in high harmonic generation using an orthogonally polarised second harmonic field*”. *J. Mod. Opt.* **2014**, *61*(7): 608–614.
- [445] X. Song, Z. Zeng, Y. Fu *et al.* “*Quantum path control in few-optical-cycle regime*”. *Phys. Rev. A*, **2007**, *76*: 043830.

- [446] M. Kitzler and M. Lezius. “*Spatial Control of Recollision Wave Packets with Attosecond Precision*”. *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 95: 253001.
- [447] H. Vincenti and F. Quéré. “*Attosecond Lighthouses: How to Use Spatiotemporally Coupled Light Fields to Generate Isolated Attosecond Pulses*”. *Phys. Rev. Lett.* **2012**, 108: 113904.
- [448] J. Wheeler, A. Borot, S. Monchocé *et al.* “*Attosecond lighthouses from plasma mirrors*”. *Nat. Photonics*, **2012**, 6(12): 829–833.
- [449] S. Odžak and D. B. Milošević. “*Bicircular-laser-field-assisted electron-ion radiative recombination*”. *Phys. Rev. A*, **2015**, 92: 053416.
- [450] X. He, J. M. Dahlström, R. Rakowski *et al.* “*Interference effects in two-color high-order harmonic generation*”. *Phys. Rev. A*, **2010**, 82: 033410.
- [451] G. Duchateau, E. Cormier, H. Bachau *et al.* “*Coulomb-Volkov approach of atom ionization by intense and ultrashort laser pulses*”. *Phys. Rev. A*, **2001**, 63: 053411.
- [452] G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. X. Wu *et al.* “*Solid-state harmonics beyond the atomic limit*”. *Nature*, **2016**, 534(7608): 520–524.

攻读学位期间发表的学术论文

- [1] 第一作者. Roles of Coulomb potentials in below- and above-threshold harmonic generation for a hydrogen atom in strong laser fields[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2016, 33(7):1558-1563.
- [2] 第一作者. Ionization and high harmonic generation of two-dimensional quasiperiodic structures in arbitrarily polarized strong laser fields[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2017, 34(1):52-59.