

学校代码: 10730

分类号: O562

密级: 公开

兰州大学

博士学位论文

(学 术 学 位)

论文题目 (中文) 宏观气体介质中的超快电子动力学过程

论文题目 (英文) Ultrafast Electronic Dynamics in

Macroscopic Gaseous Media

作者姓名 何宇

学科专业 物理学·粒子物理与原子核物理

研究方向 超快物理

教育类型 学历教育

指导教师 刘作业 教授

论文工作时间段 2018年9月 至 2023年3月

答辩日期 2023年5月28日

校址: 甘肃省兰州市城关区天水南路 222 号

原创性声明

本人郑重声明：本人所呈交的学位论文，是在导师的指导下独立进行研究所取得的成果。学位论文中凡引用他人已经发表或未发表的成果、数据、观点等，均已明确注明出处。除文中已经注明引用的内容外，不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的科研成果。对本文的研究成果做出重要贡献的个人和集体，均已在文中以明确方式标明。

本声明的法律责任由本人承担。

论文作者签名： _____

日期： _____

关于学位论文使用授权的声明

本人在导师指导下所完成的论文及相关的职务作品，知识产权归属兰州大学。本人完全了解兰州大学有关保存、使用学位论文的规定，同意学校保存或向国家有关部门或机构送交论文的纸质版和电子版，允许论文被查阅和借阅；本人授权兰州大学可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用任何复制手段保存和汇编本学位论文。本人离校后发表、使用学位论文或与该论文直接相关的学术论文或成果时，第一署名单位仍然为兰州大学。

本学位论文研究内容：

可以公开

不宜公开，已在学位办公室办理保密申请，解密后适用本授权书。

（请在以上选项内选择其中一项打“√”）

论文作者签名： _____

导师签名： _____

日期： _____

日期： _____

宏观气体介质中的超快电子动力学过程

中文摘要

自激光脉冲问世起，对超短超强脉冲产生和应用的探索一直推动着现代科学技术的前沿。基于超短激光脉冲开展的瞬态吸收光谱技术已成为探测和控制微观超快电子动力学过程的有力手段。借助简单的单粒子响应，研究人员在许多领域开展了大量实验和理论研究，取得了一系列重要成果，推动了人们对光与物质相互作用过程的理解。作为一种全光学的探测手段，介质密度的增加能提高瞬态吸收数据的信噪比，也能引起一系列新颖物理现象的出现，这需要突破稀薄介质近似，考虑宏观传播效应的贡献。此外，复杂系统的动力学过程往往涉及多电子运动，对其中电子关联效应的研究十分必要。本文主要借助飞秒和阿秒激光脉冲，旨在更好地理解 and 操控宏观介质中的超快电子动力学过程，开展了以下理论和实验研究：

1. 测量了铷原子蒸气 $5s^2S_{1/2} \rightarrow 5p^2P_{1/2,3/2}$ 跃迁在不同激光脉冲强度和气室温度（原子密度）下的吸收光谱，揭示了弱场激发及稀薄气体近似的局限性。在静态吸收研究中，吸收光谱随脉冲强度的提高由自然的 Lorentzian 线型变为非对称的 Fano 线型，并随原子密度的增加逐渐展宽，在峰位中心出现了一系列新吸收峰。结合解析及数值计算，重现了共振线型的演化规律，并证实了其由自调制及脉冲传播效应所决定。进一步地，通过两束时间延迟可调的飞秒近红外光场，研究了从稀薄气体极限到更高密度情形下的铷原子瞬态吸收特性。实验发现吸收谱线的轮廓随原子密度的增加逐渐展宽，并在峰位中心出现了新的子结构。然而频谱在正负时间延迟上的演化截然不同，表明其背后存在不同的物理规律。通过数值求解 Liouville-Maxwell 方程，重现了吸收线型随激光强度和原子密度的演化，并证实了吸收谱中正负时间延迟上的振荡来源于不同的能级相干通道。该研究工作不仅有助于理解致密系统中的强场动力学过程，还为高频激光脉冲整形提供了新方案。

2. 在理论上研究了简单原子能级体系在单束强场极紫外激光脉冲作用下的动力学演化，进一步探究了瞬态吸收研究中常用的弱场激发近似的局限性。通过 Fano 线型公式拟合吸收光谱中的共振线型，得到不对称因子 q 及其对应的偶极子相位偏移，并证实后者可用于量化在与脉冲相互作用过程后量子态间累积的相位差。进一步地，探索了该相位差对驱动激光脉冲参数（峰值功率、中心频率、脉冲宽度、啁啾等）的依赖，并结合非微扰的二能级解析模型对其演化规律做了进一步的分析 and 解释。该工作证实了通过单束强场极紫外脉冲实现对电子超快动力学过程控制的可能性，是对近年来阿秒瞬态吸收研究工作的有效补充。

3. 通过阿秒瞬态吸收光谱学, 在理论上提出并验证了一种操纵宏观介质共振吸收特性的方案。在激发脉冲作用后通过另一束飞秒脉冲将上能级完全电离, 将系统的极化响应限制在一定时域范围内, 从而实现在时域上裁剪激发脉冲在传播过程中形成的后沿, 改变其与主脉冲间的干涉结果。该方法首先被应用于氦原子 $2s2p$ 自电离态, 在理论上模拟了 Fano 线型在宏观介质中的建立和整形。数值计算结果在低原子密度的情形下与之前报道的实验结果实现了很好的一致。但在单原子近似之外, 吸收谱中出现了增强共振吸收峰以及光谱子结构, 并与脉冲时域新建立的特征间存在关联。随后, 将这一时域选通技术应用至二能级体系, 研究了自然的 Lorentzian 线型在宏观介质中的超快建立过程。数值和解析结果表明, 即便在中等光学厚度下, 与自由演化情形相比, 外场作用下介质对光脉冲的共振吸收能被减弱, 或实现超过 5 个数量级的增强。在特定的时间延迟和原子密度下, 介质能实现对入射光场共振频率处超过 99.999% 的吸收, 称之为完美共振吸收。进一步分析揭示在共振条件下, 频域完美共振吸收峰与时域 0π 脉冲形成间存在关联。通过数值求解 He 原子在单电子近似下的 Schrödinger 方程及三维 Maxwell 传播方程, 在理论上证实了该方案在真实介质中切实可行。这些研究结果表明介质对驱动脉冲的吸收可通过调节附加脉冲的时间延迟和介质的光学厚度来实现, 为对阿秒动力学过程的控制提供了新的可能性。

4. 开展了氦原子气体 $sp_{2,n\pm}$ 自电离态的阿秒瞬态吸收测量, 研究了其间的电子关联效应。自电离是写入教科书的由电子关联效应主导的动力学过程, 其中单电子近似已不再适用。由于两电子间库仑相互作用, 氦原子存在 $sp_{2,n\pm}$ 两类自电离态, 其光吸收截面, 能级宽度等参数截然不同。实验中在一束飞秒可见光脉冲作用下, $sp_{2,4-}$ 共振信号得到明显增强, 并展现出与 $sp_{2,n+}$ 系列能级截然不同的动力学演化规律。进一步探究了吸收光谱信号对脉冲强度和气体密度的依赖, 并分析了传播效应在线型调控中的作用。对 $sp_{2,n\pm}$ 两类自电离态动力学过程的研究有助于人们深入理解电子关联效应。

最后, 我们对全文研究工作进行了总结并对未来工作进行了展望。

关键词: 超短激光脉冲, 超快动力学, 瞬态吸收光谱学, 宏观传播效应, Fano 共振

ULTRAFAST ELECTRONIC DYNAMICS IN MACROSCOPIC GASEOUS MEDIA

Abstract

Since the inception of the laser, the production and application of intense ultra-short light pulses have been pushing the frontiers of modern science and technology. Transient absorption spectroscopy based on attosecond and femtosecond laser pulses has turned out to be a powerful tool for probing and steering electronic dynamics. By virtue of the single-atom response, experimental and theoretical investigations have made great success in many fields and advanced our understanding of light-matter interaction. As an all-optical technique, the rise in target density could not only increase the signal-to-noise ratio of the transient-absorption data, but also induce a series of interesting physical phenomena, which requires going beyond the approximation of a thin medium and incorporating macroscopic propagation effects. In addition, the dynamical processes of complex systems often involve multielectrons, in which the consideration of electron correlation effects is necessary. Aiming for a better understanding and manipulation of ultrafast electronic dynamics in macroscopic media, we perform the following experimental and theoretical investigations:

1. We measure the spectral signatures of the two single-electron transitions $5s\ ^2S_{1/2} \rightarrow 5p\ ^2P_{1/2,3/2}$ in Rb gas with different laser intensities and cell temperatures (atomic densities) by static and transient absorption spectroscopy, and observe the breakdown of the weak-excitation and dilute-gas approximations. In static absorption investigation, the resonant absorption profiles change from natural Lorentzian to Fano line shapes with the increase of pulse intensity. Further, as the atomic density increases, we observe broader Fano-like shapes and the appearance of novel substructures in absorption lines. Both effects observed in the experiment are well-described by analytical and numerical calculations, and the resulting spectral lines are revealed to be governed by the coexistence of self-modulation and propagation effects. Moreover, by employing two near-infrared pulses with a variable interpulse delay to excite and couple the Rb atoms, their transient absorbance is measured from the dilute-gas limit into high-densities cases. Our results reveal that the absorption lines are reshaped with substructures emerging therein with increasing atomic density. However, the spectral evolutions are rather distinctive for positive and negative time delays, pointing towards different mechanisms behind them. By numerically solving the coupled Liouville-Maxwell

equations, we reproduce the intensity- and density-controlled line shapes, and validate that the oscillating signals for negative and positive time delays originate from different coherence channels. These results not only pave the way toward studying strong-field dynamics in dense systems, but could also be applied in the shaping of high-frequency pulses.

2. Motivated by the limitation of weak-field excitation and the pioneer experimental demonstration of strong-field dressing of atomic double excitation, we theoretically investigate the coherent excitation and manipulation of a two-level system with ultra-short intense extreme-ultraviolet laser fields. By fitting the resonant absorption line shape with Fano profile, we obtain the asymmetric parameter q and the corresponding dipole phase offset. The latter quantifies the phase difference of the state coefficients after the interaction with the laser pulses. The dependence of this phase excursion on different driving pulse parameters (pulse intensity, central frequency, pulse duration, chirp) is further explored, which can be well-explained by a nonperturbative analytical model using rectangular driving pulses. The present investigation of strong-field dressing effects marks a different way to control electronic dynamics at short wavelengths, and is complementary to recent attosecond transient absorption studies treating extreme-ultraviolet pulse excitation perturbatively.

3. Through attosecond transient absorption spectroscopy, we introduce and demonstrate a general approach to manipulate the resonant absorption property of a macroscopic medium. By emptying the population of the excited state after its excitation, the polarization decay of the target system is temporally reshaped and confined. The tunable temporal gate between excitation and termination allows us to tailor the tail of the excitation pulse developed during propagation, which thus interferes controllably with the original pulse. Firstly, we employed this approach to the $2s2p$ autoionization state in helium, and simulated the formation and reshaping of a Fano resonance in macroscopic media. The numerical calculations in low pressure agree well with the previously reported experimental results. However, beyond the region where the single-atom approximation holds, we observed the emergence of spectral spikes and spectral substructures. By further analysis, the links between these features imprinted in spectral profiles and the formation of temporal characteristics in the excitation field are identified. Afterwards, the time-gating approach is applied to an ensemble of two-level systems. The numerical and analytical results demonstrate that even at moderate optical depths, the resonant absorption of light can be reduced or significantly enhanced

by more than 5 orders of magnitude relative to that without laser manipulation. Furthermore, the quasicomplete extinction of light at the resonant frequency, here referred to as resonant perfect absorption, can be achieved at certain conditions. For the special case of resonant excitation, it is revealed to be connected with the formation of zero-area pulses in the time domain. The presented concept is further supported by large-scale calculations of the coupled time-dependent Schrödinger equation in the single active electron approximation and the Maxwell wave equation in helium. These results suggest that the absorbance of the system could be switched very drastically through an auxiliary pulse and optical depth, which marks possibilities of controlling attosecond dynamics.

4. We report the attosecond transient-absorption measurement of $sp_{2,n\pm}$ doubly excited states in helium gas, and investigate the electron correlation effects. A textbook example governed by electron-electron correlation is autoionization, where the picture of single active electron breaks down. Due to the Coulomb interaction between the two electrons, there are two kinds of autoionization states in helium, $sp_{2,n\pm}$, which possess distinct parameters such as photoabsorption cross sections and energy widths. Experimentally, the spectral signature of $sp_{2,4-}$ gets significantly enhanced in the presence of a moderately intense visible pulse, and exhibits different dynamical behavior compared with $sp_{2,n+}$ states. We further measure the results for different pulse intensities and gas pressures, and analyze the roles of propagation effects in the spectral line-shape manipulation. The understanding of these dynamics would enable a closer scrutiny of electron-electron correlations.

Finally, the conducted investigations in the present dissertation are summarized and the future explorations are proposed.

Key Words: ultrashort laser pulse, ultrafast dynamics, transient absorption spectroscopy, macroscopic propagation effects, Fano resonance

目 录

中文摘要	I
英文摘要	III
第一章 绪论	1
1.1 高次谐波及阿秒脉冲产生	1
1.2 阿秒瞬态吸收研究现状	8
1.3 本文的研究内容与意义	12
第二章 理论方法	14
2.1 少能级体系数值模拟	14
2.2 连续态绝热消去与恢复	15
2.3 脉冲传播效应	20
第三章 铷原子蒸气的飞秒吸收光谱研究	23
3.1 引言	23
3.2 实验装置	23
3.3 静态吸收研究	25
3.3.1 自调制效应	25
3.3.2 传播效应	27
3.3.3 数值结果	30
3.4 瞬态吸收研究	32
3.4.1 实验结果	32
3.4.2 数值结果	33
3.4.3 解析模型	36
3.5 小结	38
第四章 单束极紫外脉冲对原子激发的直接操纵	39

4.1	引言	39
4.2	理论方法	40
4.2.1	数值方法	40
4.2.2	共振情形下的普适解	41
4.2.3	近共振情形下的解析解	41
4.3	线形变化的分析	42
4.4	脉冲参数的影响	42
4.4.1	激光强度及中心频率	43
4.4.2	激光持续时间	46
4.4.3	激光啁啾	47
4.5	小结	48
第五章 共振线型在宏观介质中的建立及完美共振吸收		49
5.1	引言	49
5.2	Fano 共振在宏观介质中的建立	50
5.2.1	理论方法	50
5.2.2	结果讨论	51
5.3	0π 脉冲诱导产生的完美共振吸收	55
5.3.1	引言	55
5.3.2	数值方法及结果讨论	56
5.3.3	解析模型的推导	60
5.3.4	光谱分辨率的影响	62
5.4	脉冲、系统及介质参数的影响	62
5.4.1	脉冲宽度及中心频率	63
5.4.2	上能级衰减时间	64
5.4.3	非高斯时域脉冲形状	64
5.4.4	稀薄气体极限	65

5.4.5	三能级情形	66
5.5	小结	67
第六章	氦原子气体双激发态阿秒瞬态吸收研究.....	69
6.1	引言	69
6.2	实验装置.....	69
6.3	实验测量与数据处理	73
6.4	实验结果及讨论	74
6.5	小结	79
第七章	总结与展望.....	80
7.1	全文总结.....	80
7.2	工作展望.....	80
附录 A	阿秒极紫外脉冲驱动光源.....	82
A.1	飞秒激光系统	82
A.2	中空光纤及啁啾镜.....	84
A.3	脉冲表征.....	86
	参考文献	88
	在学期间的研究成果	98
	致 谢	100

第一章 绪论

医用的 X 射线、皎洁的月光与走入寻常百姓家的微波，本质为不同波长的电磁波。伴随着对“光”的开发和利用，人类走出了日出而作，日落而息的农耕文明，而对广义电磁信号的探索和应用，正一步步革新现代文明的生产生活方式。

蔚蓝的海水、绚丽的焰火、五彩的颜料、以及太阳连续光谱中的暗线，物质表面或内部对可见光的选择吸收和发射（以及反射、透射），构成了琳琅满目、五彩缤纷的物质世界。在微观层面研究和控制粒子的运动，有助于人们理解和操控介质的吸收和发射特性，从而更好地认识和改造世界。

工欲善其事，必先利其器。短曝光时间的的相机，回答了高速奔跑中的马儿是否存在四条腿同时离地的时刻。伴随着超短脉冲技术的不断发展，对微观超快过程的探究，也从飞秒 ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$)、阿秒 ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) 走向了仄秒 ($1 \text{ zs} = 10^{-21} \text{ s}$)。科学家们对未知总是心驰神往，也正努力尝试揭示万物万象的规律。

1.1 高次谐波及阿秒脉冲产生

1960 年，Maiman 制成了世界上第一台激光器。有别于普通光源，激光的高方向性和时空相干性为古老的光学注入了新的活力。激光技术在随后的几十年间得到了空前的发展，脉宽不断降低，强度逐渐提高。调 Q 技术^[1]的发明将脉冲激光的持续时间从微秒 ($1 \mu\text{s} = 10^{-6} \text{ s}$) 降到了纳秒 ($1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$)。锁模技术^[2]的诞生和发展及宽增益染料激光介质^[3]的应用将脉冲压缩至皮秒以下 ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$)，超快激光进入飞秒时代^[4]。1987 年，R. L. Fork 等人通过结合光栅对及棱镜对补偿脉冲的二阶及三阶色散，将脉冲宽度压缩至了 6 fs ^[5]。随着掺钛蓝宝石晶体 (Ti:Sapphire) 替代了有机染料分子作为增益介质，超短脉冲激光器性能得到了明显提升，结构更加紧凑，操作也更为便利，但脉冲宽度在这段时期内没有质的进步。对于脉冲强度，由于自聚焦等非线性效应的影响，飞秒激光在共振腔内的直接放大不太可行。受雷达领域技术的启发，Donna Strickland 和 Gérard Mourou 在 1985 年采用啁啾脉冲放大技术 (Chirped Pulse Amplification, CPA)^[6]，解决了这一难题。其原理如图 1-1 所示，这一技术成功将脉冲峰值功率提升至拍瓦 ($1 \text{ PW} = 10^{15} \text{ W/cm}^2$) 量级，被授予了 2018 年 Nobel 物理学奖，一直沿用至今。

尽管通过多路不同中心波长的激光脉冲合并的光场相干合成技术，在可见及其相邻频段已能实现亚周期甚至短于 1 fs 的激光脉冲^[7]。为了实现在阿秒量级的原子分子中电子运动的自然时间尺度下研究微观世界超快动力学过程，激光脉冲

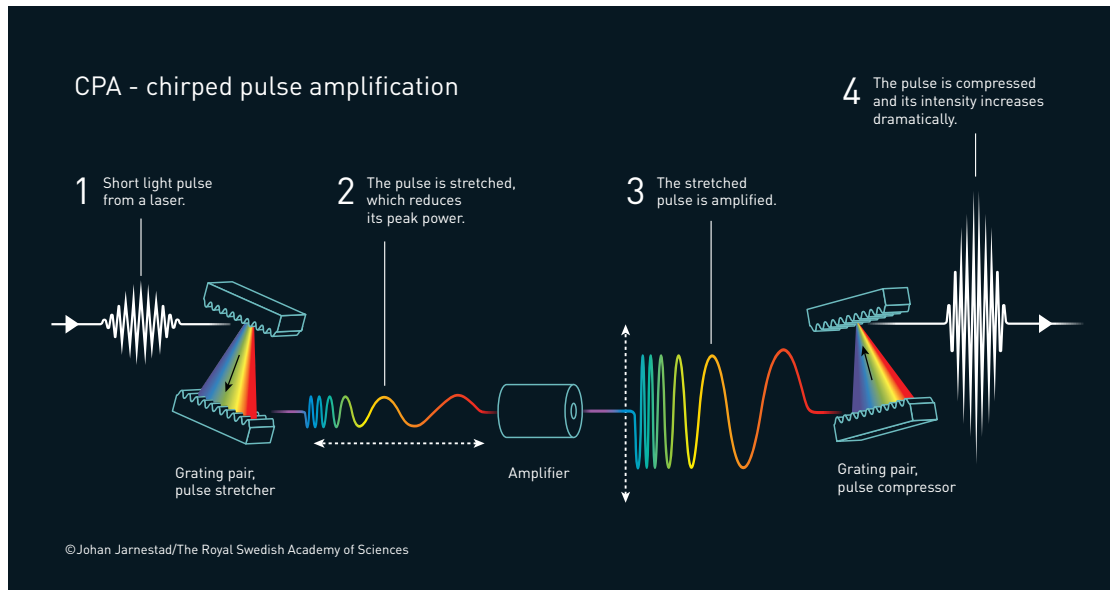


图 1-1 啁啾脉冲放大原理示意图。图源瑞典皇家科学院。

需转向载波频率更高，振荡周期更短的极紫外 (extreme-ultraviolet, XUV/EUV) 及 X 射线波段。1987 年前后，A. McPherson 等人^[8] 及 M. Ferray 等人^[9] 发现，高强度的皮秒量级激光与惰性气体相互作用后，能放出光子能量为驱动光场频率整数（奇数）倍的相干辐射，称为高次谐波 (High-Harmonic Generation, HHG)。典型的 HHG 光谱如图 1-2 所示：低阶谐波强度随谐波阶次增加迅速降低，与微扰论预言结果一致；随后光谱在很大带宽内强度几乎不变，为平台区；最后谐波强度再次迅速降低，直至消失。通常称平台区最高阶次（截止区开始阶次）为截止阶。理论学者随后预言，具有合适相位关系的高次谐波可产生时域特征宽度为阿秒量级的脉冲串^[10,11]。

1993 年，P. B. Corkum^[13] 以及 K. J. Schafer^[14] 等人提出了气体高次谐波产生的半经典模型，也称“三步模型”。其核心思想如下：首先，当驱动光场强度足够高时，离子库仑势被压低，束缚态电子隧穿出势垒，成为自由电子，初速度近似为零；电子在激光场中运动，运动轨迹可由经典力学牛顿运动方程描述；激光电场反向后，部分电子得以返回与母离子结合，释放高次谐波光子。半经典三步模型对 HHG 产生过程提供了直观的物理图像，M. Lewenstein 等人随后基于强场近似，为该过程提供了量子诠释^[15]，如图 1-3 所示。由于 HHG 产生过程极度依赖于驱动脉冲偏振，P. Corkum 等人随后通过两束垂直偏振的脉冲驱动，在理论上预言了孤立阿秒脉冲的产生^[16]。由于能量守恒，高次谐波光子能量包含了电子的电离能及其在电场中获得的动能，截止阶能量表达式如下^[13]，其与 J. L. Krause

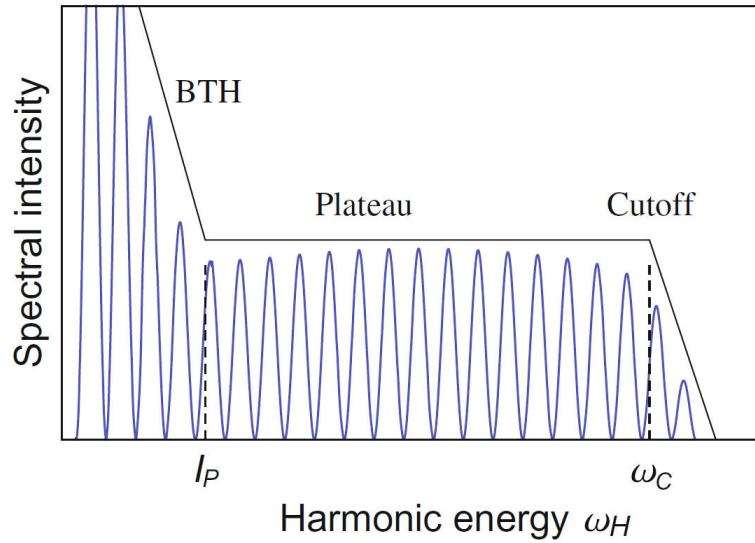


图 1-2 典型的 HHG 光谱^[12]。低于电离势的谐波 (Below-Threshold Harmonics, BTH) 强度随阶次增加迅速下降，平台区强度几乎不变，截止阶后谐波强度迅速降低。

等人从数值求解 Schrödinger 方程计算的谐波谱中总结的经验公式一致^[17]

$$E_{\text{HHG,cutoff}} = I_p + 3.17U_p. \quad (1-1)$$

其中 I_p 为电离势， U_p 为有质动力势，即电子在电场中周期性振荡的平均动能， $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \propto I\lambda^2$ 。上式中 e 和 m 分别为电子电荷和质量， E 为电场强度， I 为激光强度， λ 和 ω 分别为激光波长和角频率。由于稀有气体较高的电离势 I_p ，其被常用作高次谐波产生介质。此外，由式 (1-1) 及 U_p 的表达式可知，驱动光场波长越长，产生的高次谐波截止频率越高。而载波频率越高，对应的光学振荡周期越短。2012 年，T. Popmintchev 将中红外飞秒激光脉冲通入充有高压 He 气的波导管中，在实验上测到了高达 5000 阶，频谱宽度大于 0.7 keV，理论上支持产生 2.5 as 时域脉宽的 HHG 光谱，如图 1-4 所示。因此，采用中红外脉冲激光作为驱动光源成为了产生软 X 射线甚至更高光子能量，更短激光脉宽的重要手段。

半经典的“三步模型”和强场近似下的量子模型都预言，对线偏振的多周期飞秒脉冲，其驱动产生的 HHG 在时域上对应于一串重复频率为基频光场半周期的阿秒脉冲。由傅里叶变换，它们的干涉导致了频域分立的梳状谐波谱的出现，梳齿间的间隔为 2ω 。对于许多研究，从阿秒脉冲串中分离出孤立阿秒脉冲是十分有价值的，该选通过程类似于飞秒激光技术中从锁模脉冲串中通过 Pockels 盒挑选出单个脉冲。实验上常用的选通方法分为分为两类^[20]，一类是在单原子层面，通过操纵再碰撞的电子，使得仅有在驱动光场某半周期内产生的谐波占据主导地位，如振幅门 (amplitude gating)^[21--23]、电离门 (ionization gating)^[24--27]、偏振门 (polarization gating)^[16,28,29] 及双光门 (double optical gating)^[30--33] 等；第二类是通过

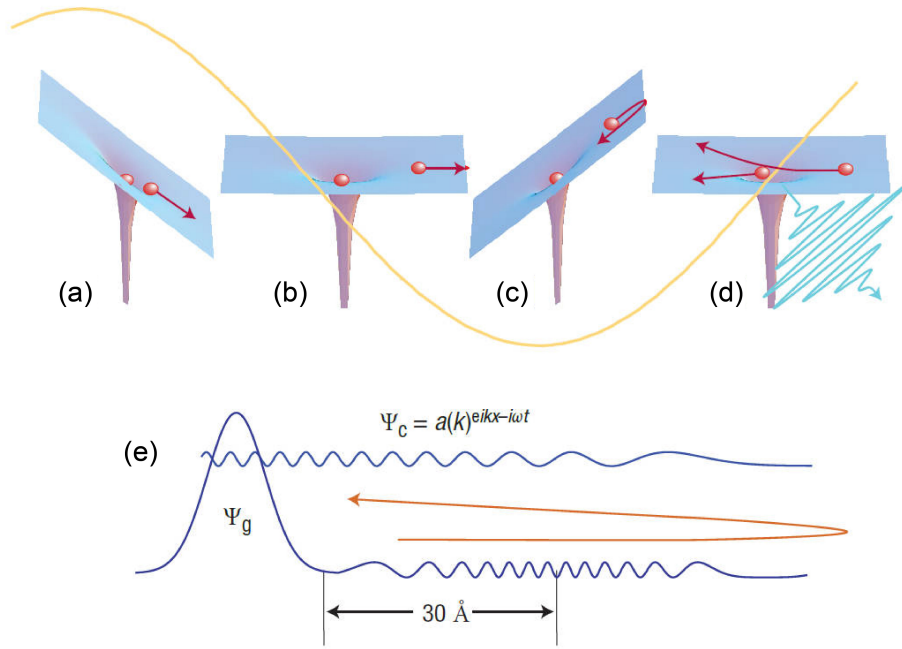


图 1-3 高次谐波产生阿秒脉冲物理图像^[18]。(a)-(d) 半经典“三步模型”。(e) 量子视角。电离将波函数分为两部分：一部分仍在原轨道 Ψ_g ，电子波包 Ψ_c 在连续态中运动。类似于 (a)-(d)，当驱动光场将 Ψ_c 拉回母离子，波函数的干涉将诱导偶极响应，释放光波。在此过程中，回碰的电子波包动能、幅度和相位将通过电偶极矩转移到光脉冲中。

操纵光束使得不同半周期具有不同波前，其驱动产生的 HHG 具有不同指向，通过空间分离即可得到孤立阿秒脉冲，常见的方式包含非共线选通门 (noncollinear optical gating)^[34,35] 及阿秒灯塔 (attosecond lighthouse)^[36,37]。

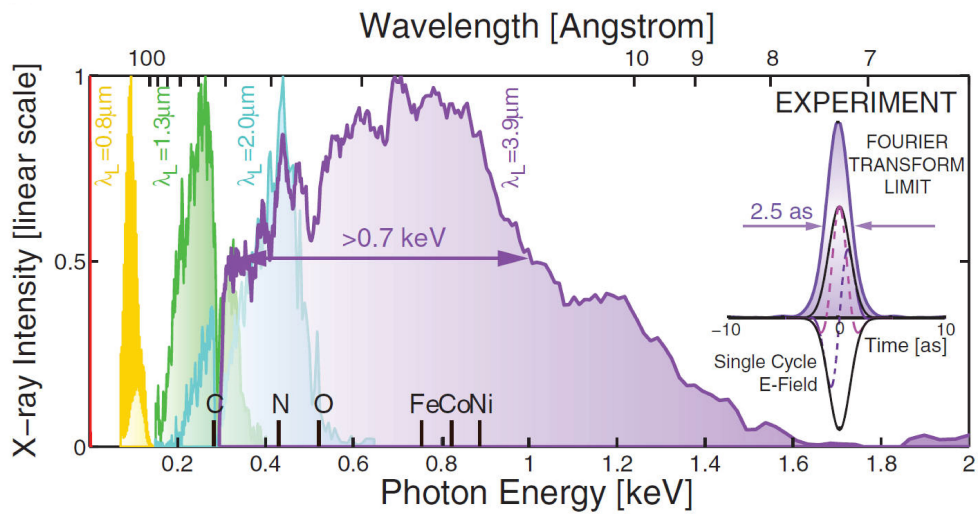


图 1-4 相位匹配条件下 HHG 谱随驱动脉冲波长的演化^[19]。3.9 μm 脉冲驱动下产生的千电子伏量级 HHG 带宽，其傅里叶变换极限为时域宽度 2.5 as 的 X 射线脉冲。

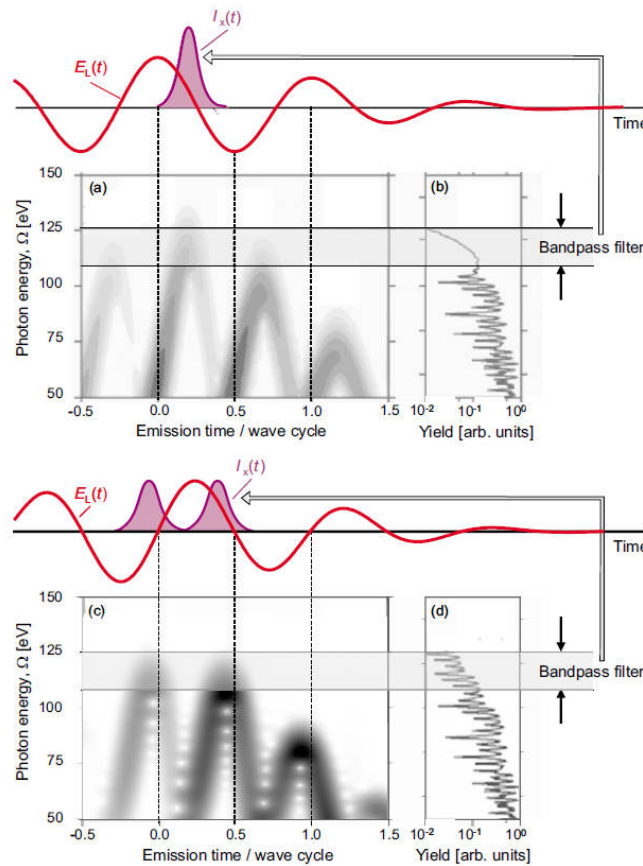


图 1-5 孤立及两个阿秒脉冲产生^[38]。(a), (c) 少周期 (5 fs, 800 nm) 脉冲驱动下产生的高次谐波时频图。(b), (d) 高次谐波频谱, 其截止区分别为连续谱和振荡谱。滤出正 (a), (b) 及余弦形 (c), (d) 驱动脉冲产生的谐波谱高频成分, 可在时域上分别产生孤立及双亚飞秒极紫外脉冲。

上述主要选通技术原理简要说明如下: 振幅门中采用载波包络相位 (Carrier Envelope Phase, CEP) 稳定的少周期飞秒驱动脉冲, 并配以合适的滤波片以滤出截止区; 图 1-5 展示了该方案下驱动脉冲 CEP 的影响。电离门的核心为通过电离产生的等离子体破坏高次谐波相位匹配 (phase matching) 条件, 使得谐波发射局限于驱动脉冲前沿的 1-2 个半周期内, 如图 1-6 所示。偏振门中, 驱动脉冲的椭圆偏率随时间变化, 使得电子仅在很小的时间窗口内能与母离子再碰撞, 如图 1-7 所示。双光门中采用基频光及其二倍频, 由于倍频光破坏了基频光的电场对称性, 使得产生的阿秒脉冲间隔提高为一个基频光振荡周期。再结合偏振选通, 可提高所需的偏振门宽度, 使得多周期脉冲驱动产生孤立阿秒脉冲成为了可能。阿秒灯塔中, 驱动脉冲时空耦合, 波前随时间连续变化, 每半周期内产生的 HHG 具有不同空间指向。当该差异大于光束发散角, 阿秒脉冲串在远场不同位置处则分离为一系列孤立阿秒脉冲, 如图 1-8 所示。

2001 年, P. M. Paul 等人基于双光子干涉的阿秒拍频重构技术 (Reconstruction

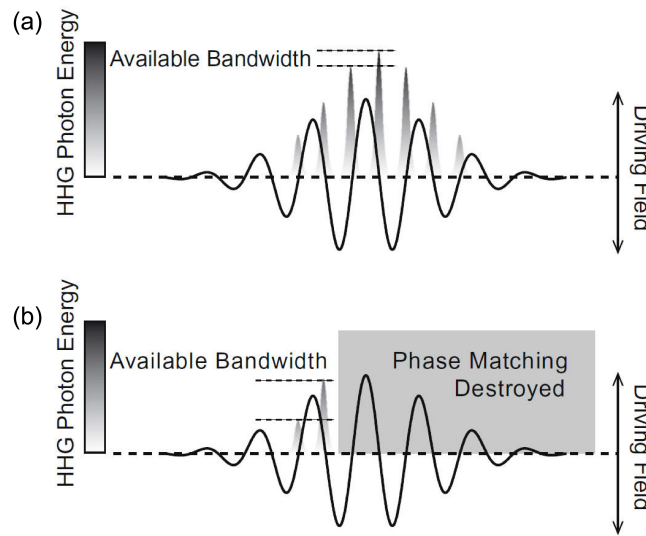


图 1-6 振幅门与电离门的比较^[26]。(a) 传统振幅门产生孤立阿秒脉冲方案中，脉冲可用频谱由驱动光场峰值附近临近半周期的电场强度差决定。(b) 在电离门中，由于驱动脉冲上升沿强度变化更为剧烈，上述强度差更大，可利用的阿秒脉冲频谱更宽。

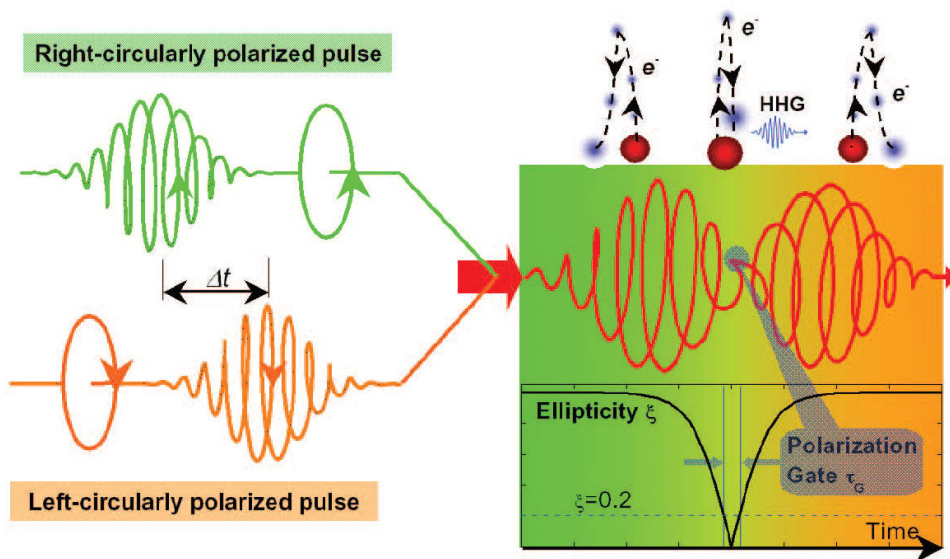


图 1-7 偏振门^[39]。一束左旋和右旋的脉冲合成了一束椭偏率随时间变化的脉冲，由“三步模型”，再碰撞仅在脉冲中间椭偏率接近为 0 时才能发生。

of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions, RABBITT)，首次报导了时域宽度为 250 as 的脉冲串^[41]；同年，M. Hentschel 等人借助阿秒条纹技术 (attosecond streaking)，首次从阿秒脉冲串中孤立并表征了时域宽度为 650 as 的单个阿秒脉冲^[21]，这标志了阿秒科学的诞生。2017 年，瑞士 Wörner 课题组采用 1.8 μm 的中红外驱动光源，在 Ar 气中产生了迄今最短的 43 as 脉冲^[40]。

近年来，强场超短激光脉冲驱动固体^[42]、液体^[43]等介质产生高次谐波也取

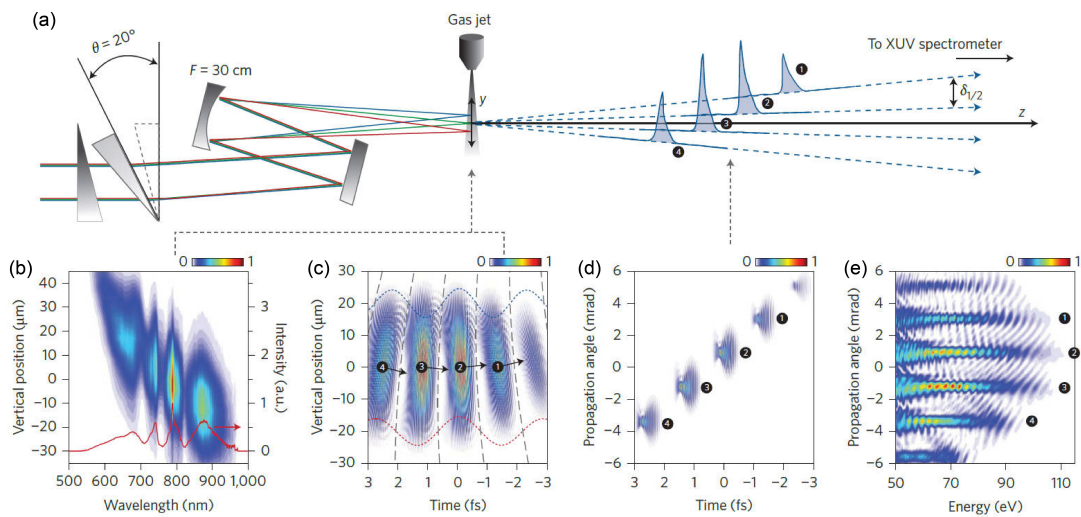


图 1-8 阿秒灯塔^[39]。(a) 实验装置示意图。光路中插入一对不对齐的光楔，使得脉冲在焦点处具有空间啁啾，每半周期内驱动产生的阿秒脉冲指向不同的空间方向。(b) 焦点处具有空间啁啾的驱动脉冲光谱。(c)-(e) 该脉冲驱动产生的 XUV 光理论计算结果。

得了重要的理论和实验进展。但在阿秒物理领域，通过稀有气体介质产生高次谐波已成为较为成熟的技术手段，物理机制最为清晰，相较于其它方案能提供较高

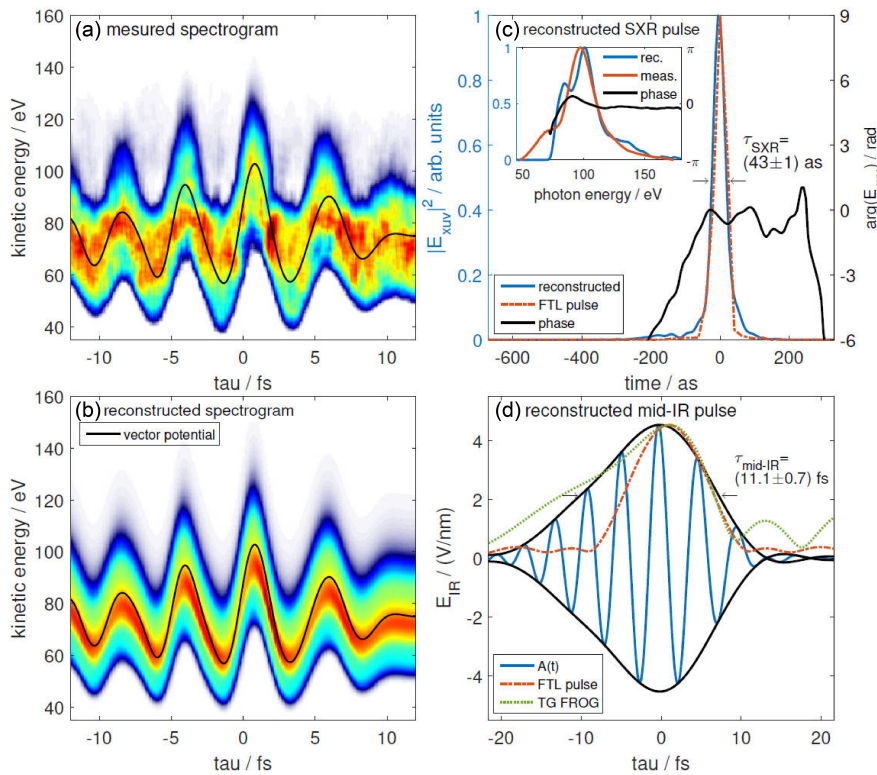


图 1-9 条纹谱及重建的激光脉冲^[40]。(a) 实验测量及 (b) 重建的阿秒条纹谱。重建得到的 (c) 阿秒软 X 射线脉冲和 (d) 飞秒中红外驱动脉冲。

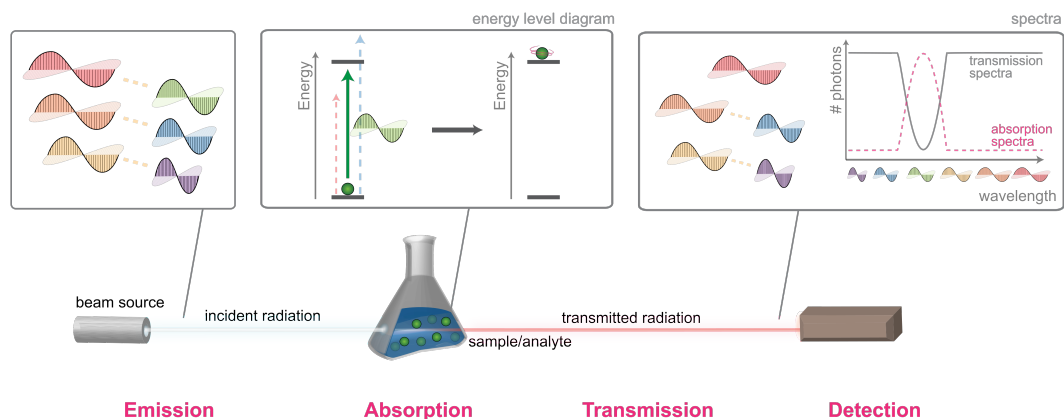


图 1-10 吸收光谱原理示意图。入射光束包含宽带频谱，穿过待测样品时与其跃迁频率匹配的光谱成分将被吸收，相应强度减小。通过对比透射光谱相对于入射光谱的衰减，可以得到介质吸收信号。图源维基百科。

的光子通量，且是一种台式的方案，是目前应用最广的超短极紫外光源。

阿秒物理蕴含的丰富科学价值及广阔应用前景吸引了国内科学家的关注，许多知名院校和研究所中各类基础及应用研究正如火如荼开展。中国科学院物理研究所魏志义团队于 2013 年报道了 160 as 孤立阿秒脉冲的测量结果^[44]。2020 年，华中科技大学陆培祥团队 (~270 as)^[45]，国防科技大学赵增秀团队 (~88 as)^[46]和中国科学院西安光学与精密机械研究所赵卫团队 (~159 as)^[47] 相继实现了孤立阿秒脉冲的产生和测量。各大课题组在高次谐波产生^[48-52]，超快分子电离解离^[53-55] 等领域取得了一系列重要的理论及实验成果。

1.2 阿秒瞬态吸收研究现状

传统的吸收光谱学主要通过测量介质对电磁辐射的吸收，研究被测样品元素组成及其含量，如图 1-10 所示。1802 年，英国化学家 William Hyde Wollaston 首次发现了太阳连续光谱中的暗线^[56]。1814 年，德国物理学家 Joseph von Fraunhofer 独立地发现了这些谱线并对其开展了系统性的测量，称为 Fraunhofer 线。1859 年，德国海德堡大学的 Gustav Kirchhoff 与其同事 Robert Bunsen 通过将一架直筒望远镜和三棱镜组合，制成了一台光谱仪，并系统性地分析了太阳的吸收光谱。通过与原子特征发射谱线对比，他们推断了太阳大气中的元素组成，开创了光谱分析法。

通过高次谐波产生的宽带 XUV 脉冲的一个主要应用是阿秒瞬态吸收测量。阿秒瞬态吸收光谱学 (Attosecond Transient Absorption Spectroscopy, ATAS) 为一种有效研究超快动力学过程、全光学的探测方法。其本质为时间分辨的泵浦-探测

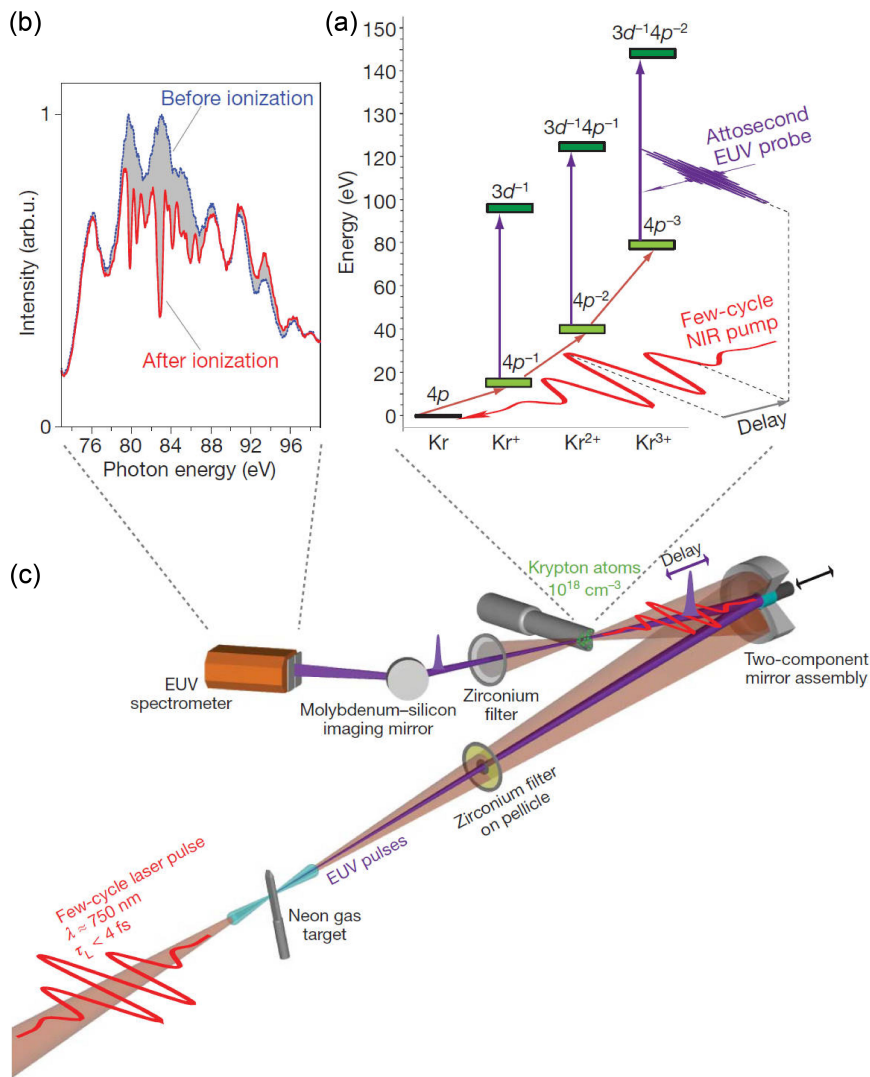


图 1-11 阿秒瞬态吸收光谱探究原子内电子运动过程^[57]。(a) 少周期 NIR 脉冲通过光致电离 Kr 原子，随后的阿秒 EUV 脉冲将 Kr^+ 激发至响应激发态，瞬态 EUV 吸收光谱通过测量不同时间延迟处的 EUV 透射信号得到。(b) 电离前后的 EUV 透射光谱。(c) 实验装置简要示意图。

技术，核心为时间延迟可调的两束超短脉冲。通常情形下，其采用一束少周期飞秒可见 (visible, VIS) 或近红外 (near-infrared, NIR) 脉冲激发样品，并用另一束孤立阿秒脉冲或阿秒脉冲串探测样品的动力学演化。与光电子、光离子测量相比，光谱测量能实现更高的频谱分辨率，数据收集效率更高，且不受空间电荷效应的限制，可应用于致密介质的测量。其次，孤立阿秒脉冲的宽带连续光谱还提供了对多共振动力学过程的同时测量。

2010 年，德国马克斯普朗克量子光学研究所 F. Krausz 团队开展了第一个阿秒瞬态吸收实验研究，探测了 Kr^+ 离子自旋轨道波包间相干的建立，以及价电

子波包的运动^[57]，如图 1-11 所示。同年，Z. Chang 团队开展了第一个利用孤立阿秒脉冲 (~ 140 as) 对原子系统 Fano 共振的瞬态吸收测量，并证实了强激光场对自电离过程的控制^[58]。该团队后续发现了 He 原子单激发态亚周期的 ac Stark 偏移及吸收线型展宽，证实了束缚电子也能实现对外加光场的近瞬时响应^[59]。在 2013 年，C. Ott 等人提出了一种普适的时域相位形式，将 Fano 线型的不对称因子 q 与介质时域极化响应函数的相位 ϕ 联系起来，并在实验上通过调节近红外脉冲的强度，实现了 He 原子中单激发态自然的 Fano 线型到 Lorentzian 线型，以及双激发态自然的 Lorentzian 线型到 Fano 线型的转变^[60]，如图 1-12 所示。其次，关联的两电子波包可从 $2s2p$ 和 $sp_{2,3+}$ 的拍频信号中重建得出。通过改变脉冲强度调节两自电离态间的耦合，并将 Fano 共振作为相位灵敏的量子干涉仪，可用于实现两关联电子运动的相干控制^[61]。此外，由于自电离过程存在一定寿命，该课题组还于 2016 年通过一强激光脉冲在不同时间延迟处终止 $2s2p$ 态的自电离，报导了 Fano 共振在超快时间尺度上的建立^[62]，如图 1-13 所示。进一步地，基于因果律，在超短脉冲激发近似下，单个时间延迟下的吸收线型可用于重建系统时域的极化响应^[63]。在 2023 年，俄亥俄州立大学 Louis F. DiMauro 团队还报导了 Kramers-Kronig 关系在阿秒瞬态吸收光谱中的适用性检验结果^[64]。

气相原子体系之外，阿秒瞬态吸收光谱在更复杂的分子（气、液相）、固体介质的研究中也取得了巨大成功。最近几年间，加州大学伯克利分校 S. Leone 课题组借助该技术，开展了含卤素原子的双原子^[65]及多原子分子^[66,67]介质中圆锥交叉 (conical intersections) 研究。通过高次谐波产生的“水窗” (284-543 eV) 区域软 X 射线，Y. Pertot 等人研究了 CH_4 及 SF_6 分子离子的解离动力学^[68]，为在超短时间尺度上观测化学反应奠定了基础。N. Saito 等人同时观测到了 NO 分子从阿秒到亚皮秒的电子、振动及转动动力学过程^[69]。2021 年，P. Peng 等人利用 NIR 脉冲激发 H_2/D_2 分子的转动波包，通过 XUV 吸收线型提取了偶极响应的相位，证实了分子基态转动态相干对吸收线型的控制^[70]。对于固体介质中超快电子动力学过程的研究有望实现绝缘体到导体的超快光致转变，提高电子学元件的响应时间，提升信息及信号处理能力^[71]。2013 年，M. Schultze 等人首先将 ATAS 推广到了固体介质的研究，并证明了超快激光可以控制电介质 (dielectrics) SiO_2 的物理特性，该过程可逆且响应时间极短^[72]。随后，其又用该方法研究了半导体 Si 中的超快载流子光注入，并结合理论模拟将该过程解释为光场作用下的电子隧道电离^[73]。在 2017 年，M. Lucchini 等人研究了少周期飞秒脉冲作用下多晶金刚石薄膜 (polycrystalline diamond pellicle) 中的动态 Franz-Keldysh 效应，并将带间电流解释为导致该现象的主要物理机制^[74]。

近年来，伴随着自由电子激光 (Free Electron Laser, FEL) 技术的发展及其实

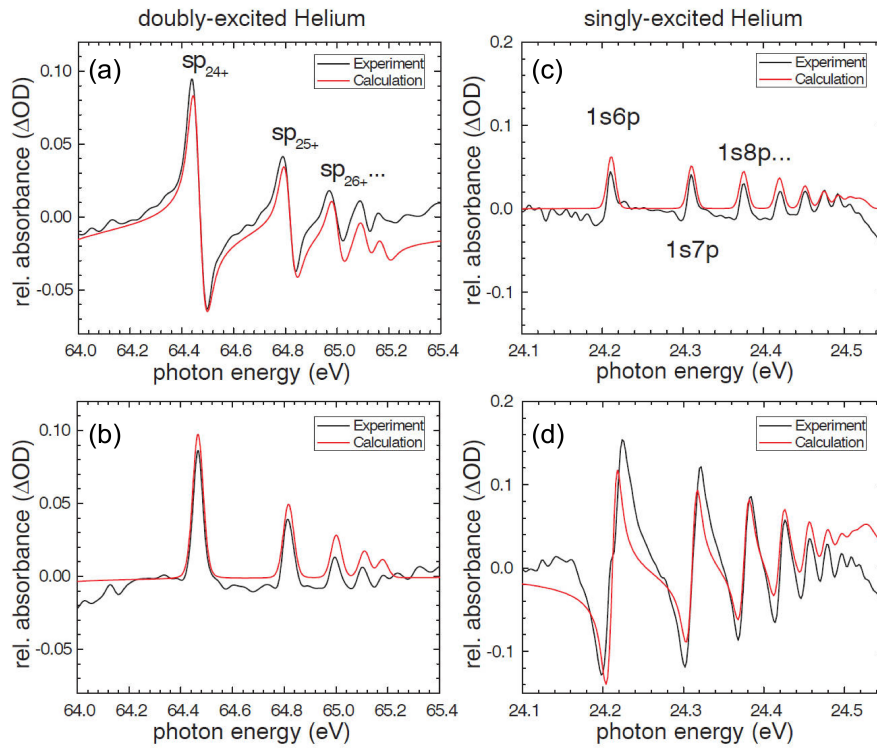


图 1-12 吸收线型在外场下的调控^[60]。在时域宽度为 7 fs，脉冲强度约为 2.0×10^{12} W/cm²，晚于阿秒激发脉冲约 5 fs 的飞秒激光脉冲作用下，He 原子双激发态自然的 Fano 线型 (a) 转变为对称的 Lorentzian 线型 (b)，单激发态自然的 Lorentzian 线型 (c) 在外场下转变为不对称的 Fano 线型 (d)。

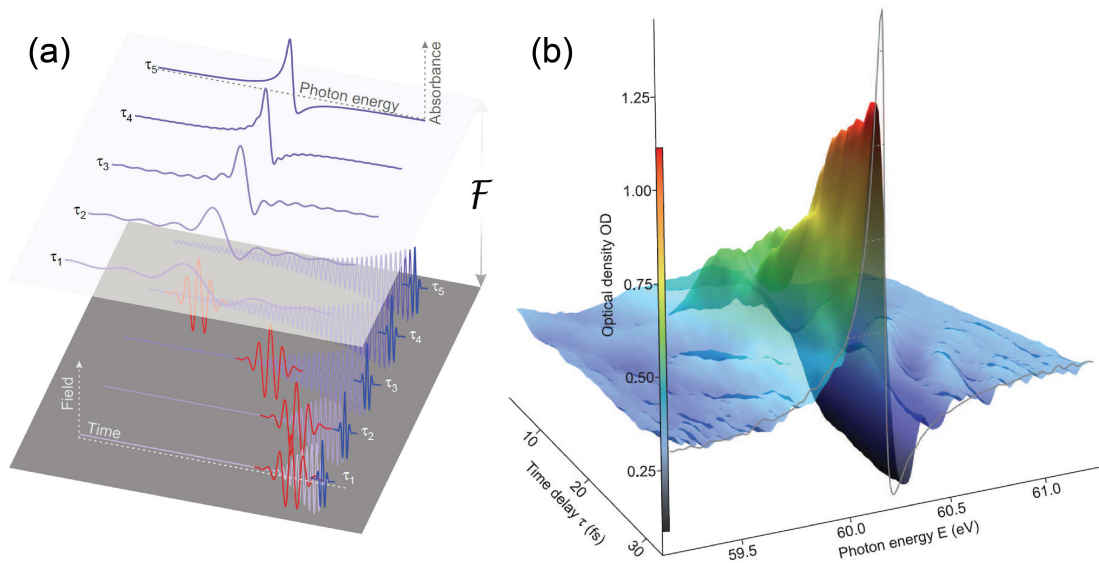


图 1-13 Fano 共振在时域的建立^[62]。(a) 线型建立过程中的时频联系。(b) 实验测量到的 He 原子 $2s2p$ 态瞬态吸收光谱。

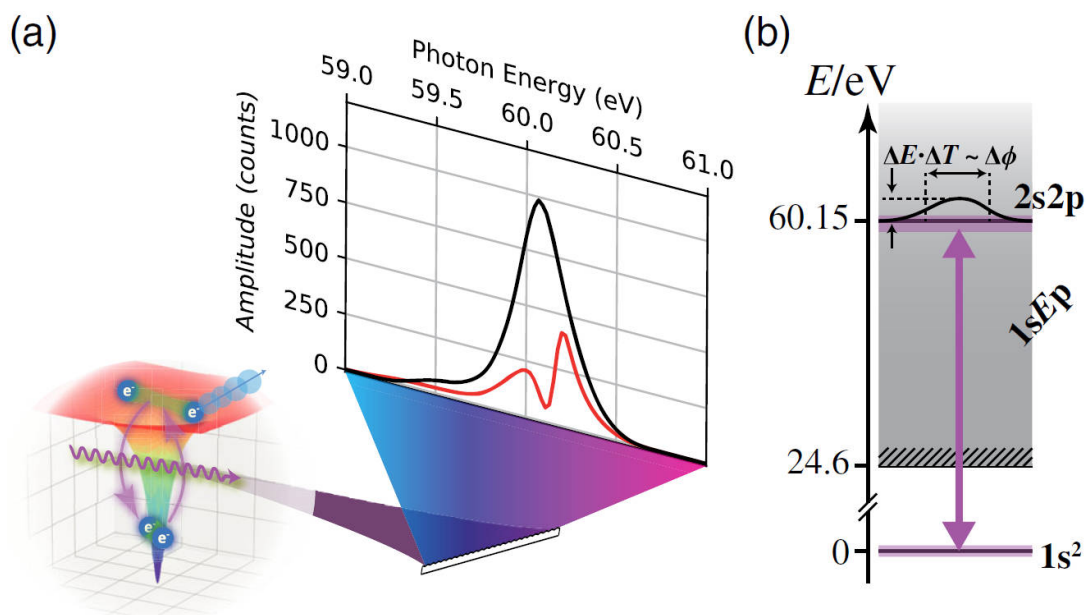


图 1-14 强激光场直接调制 Fano 共振实验过程及原理示意图^[75]。(a) 与双电子跃迁共振的强场 XUV 脉冲与介质相互作用，有无 He 靶气体存在时的透射光谱分别由红色和黑色曲线所示。(b) He 原子能级示意图。在脉冲宽度 ΔT 内，强激光场缀饰诱导产生瞬态能级偏移 ΔE ，体现为系统的极化响应相位偏移为 $\Delta\psi$ 。

验光源的建设，FEL 脉冲也开始广泛地用于超快时间分辨的泵浦-探测测量。不同于高次谐波产生的高频脉冲，FEL 激光提供的高光子通量使得在极紫外、X 射线波段的非线性光学研究，以及全 XUV 的泵浦探测测量开展成为了可能。例如，德国马克斯普朗克核物理所的 T. Pfeifer 和 C. Ott 领导的研究小组证实了单束极紫外脉冲对 He 原子 $2s2p$ 自电离态吸收线型的控制^[75]， Ne^{2+} 能级的 ac Stark 偏移^[76]，以及 CH_2I_2^+ 解离过程中的分子结构变化^[77]。最近，他们还结合了 FEL 及高次谐波产生的极紫外脉冲，开展了 XUV-FEL-pump - XUV-HHG-probe 的瞬态吸收测量，研究了 O_2 离子的解离动力学。

1.3 本文的研究内容与意义

随着超快物理的研究逐渐深入至更加复杂、致密的介质系统，常用的单原子响应近似已不再适用，探究激光脉冲在介质中传播所引入的物理效应十分必要。其次，复杂系统的动力学过程往往涉及多电子运动，对电子关联效应的研究有助于深入理解多体问题，并检验现有理论模型的适用性。在本文中，我们将结合飞秒及阿秒激光脉冲，在理论和实验上对原子系综开展静态及瞬态吸收研究。特别地，我们关注于单原子响应及单电子近似之外的动力学演化，探究激光与物质的

集体相互作用以及电子关联效应所带来的新物理现象。

第二章介绍了本文所采用的理论方法。包含了单原子近似下少能级体系动力学演化的数值模拟，以及处理连续态所采用的绝热消去与恢复，并进一步地引入脉冲传播的处理。

第三章介绍了同色非共线飞秒泵浦-探测装置，以及通过其开展的 Rb 原子蒸气静态和瞬态吸收测量。通过研究系统吸收线型随脉冲强度和气室温度（原子密度）的演化，揭示了弱场激发和单原子响应近似的局限性，并结合理论计算重现了实验结果，阐明了相干在线型调控中的作用。

第四章研究了简单二能级体系在单束强场极紫外脉冲作用下的动力学演化。探索了系统共振吸收线型及相应的偶极子相位偏移对驱动激光脉冲参数的依赖，并结合非微扰解析模型对其演化规律开展了分析解释。该项研究揭示了常用的三种用于模拟瞬态吸收光谱线型变化模型的不适用性，是对近年来微扰处理 XUV 激发过程的阿秒瞬态吸收研究的有效补充，其还有助于实现高频脉冲对超快原子动力学过程的直接控制。

第五章模拟了 Fano 及 Lorentzian 线型在宏观介质中的建立，并在理论上提出并验证了一种通过在时域上裁剪激发脉冲在传播过程中形成的后沿，改变其与主脉冲间的干涉结果，从而操纵宏观介质共振吸收特性，并在特定条件下实现完美共振吸收的普适方案。进一步地，通过数值求解 He 原子在单电子近似下的 Schrödinger 方程及三维 Maxwell 传播方程，还证明了该方案在真实介质中切实可行。

第六章开展了 He 原子气体双激发态的阿秒瞬态吸收测量。介绍了所用的阿秒瞬态吸收束流线，在实验上观察到了吸收谱中 $sp_{2,4-}$ 特征信号在外场作用下的增强，以及其展现的与其余能级截然不同的动力学演化规律，并探究了其光谱信号对脉冲强度以及靶气体密度的依赖。对 He 原子两类自电离态不同动力学行为的研究，有助于更深入地理解电子关联效应。

第七章为全文总结及未来工作展望。

第二章 理论方法

本章主要介绍论文研究工作开展中主要涉及到的理论方法, 从单原子响应近似下少能级体系动力学演化的数值模拟出发, 包含波函数及密度矩阵描述, 以及对连续态存在情形的简化处理, 随后引入脉冲传播效应。

2.1 少能级体系数值模拟

尽管大规模 (large-scale) 的基于求解系统波函数在空间和时间上演化的计算已经能很好地重现实验结果, 但少能级模型 (few-level model) 由于结构简单, 应用方便, 在简化问题、分析内在物理规律方面扮演着不可或缺的作用。在非相对论量子力学框架下, 量子系统的动力学演化由含时 Schrödinger 方程描述 [在本论文中, 若非特别说明, 均采用原子单位制 (atomic units) $\hbar = m_e = e = a_0 = 1$]

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}_0 |\Psi(t)\rangle. \quad (2-1)$$

在相互作用图像 (interaction picture, 又称 Dirac picture) 下, 系统的 Hamilton 量可分为两部分 $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$ 。 \hat{H}_0 表示体系本身 (与外界无相互作用时) 的 Hamilton 量, 不显含时间 t ; \hat{V} 为体系与外界的相互作用。由态叠加原理, 系统的波函数可表示为正交归一化基底 $|n\rangle$ 的线性叠加

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_1^n c_n(t) |n\rangle, \quad (2-2)$$

量子态的复系数 $c_n(t) = \langle n | \Psi(t) \rangle$ 代表了线性叠加态 $|\Psi(t)\rangle$ 中 $|n\rangle$ 的权重及相位。将波函数的表达式 (2-2) 带入 Schrödinger 方程 (2-1), 可得态系数的含时演化满足的微分方程

$$i \begin{pmatrix} \dot{c}_1 \\ \dot{c}_2 \\ \vdots \\ \dot{c}_n \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} E_1 & V_{12} & & V_{1n} \\ V_{21} & E_2 & & V_{2n} \\ & & \ddots & \\ V_{n1} & V_{n2} & & E_n \end{bmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ \vdots \\ c_n \end{pmatrix}. \quad (2-3)$$

在偶极近似, 长度规范下系统与激光场相互作用势能 $\hat{V} = -E(t) \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}}$, 其中 \mathbf{n} 为电场偏振方向上的单位矢量, $\hat{\mathbf{d}}$ 为偶极算符。在后文中, 我们仅考虑线偏振的激光电场, 哈密顿量中的非对角元可表示为

$$\hat{V}_{ij} = \langle i | \hat{V} | j \rangle = -d_{ij} E(t). \quad (2-4)$$

在本文所述研究工作中，我们关注于系统的偶极响应，其正比于电偶极矩的期待值

$$P(t) = N d(t) = N \langle \Psi(t) | \hat{d} | \Psi(t) \rangle = N \sum_{n,m} c_n^*(t) c_m(t) d_{nm}, \quad (2-5)$$

其中 N 为原子密度。单原子近似下，光密度与偶极响应可通过下式联系^[78]

$$\text{OD}_s(\omega, \tau) \propto -\omega \text{Im}[\tilde{d}(\omega)/\tilde{E}(\omega)]. \quad (2-6)$$

仅关注共振能量附近时，上式可简化为

$$\text{OD}_s(\omega, \tau) \propto -\text{Im}[\tilde{d}(\omega)]. \quad (2-7)$$

此外，量子系统还可通过密度矩阵描述，定义与量子态 $|\Psi(t)\rangle$ 相应的密度算符

$$\rho(t) = |\Psi(t)\rangle \langle \Psi(t)| = \sum_{n,m} \rho_{nm} |n\rangle \langle m|. \quad (2-8)$$

密度矩阵的表达式为

$$\rho_{nm}(t) = \langle n | \rho(t) | m \rangle = c_n(t) c_m^*(t), \quad (2-9)$$

其对角元 $\rho_{nn}(t) = |c_n(t)|^2$ 为系统在 $|n\rangle$ 态的布居，非对角元 $\rho_{nm}(t) = c_n(t) c_m^*(t)$ ($n \neq m$) 表征 $|n\rangle$ 和 $|m\rangle$ 态的相干。考虑布居和相干的衰减及退相干，密度算符随时间的演化满足 Louville (-von Neumann) 方程

$$i \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = [\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)] - i \hat{\gamma} \circ \hat{\rho}(t), \quad (2-10)$$

式中 $\hat{\gamma}$ 为衰减矩阵。对比波函数与密度矩阵描述，其在一定条件下等价。不同的是，波函数描述下的基本元素为各量子态，可直接索取其态系数在外场下的演化。而密度矩阵的基本元素为各能级布居及能级间相干，可独立考虑布居减少及退相干。在实际的工作开展中，可基于所关注的物理问题，选择系统恰当的描述方式。

2.2 连续态绝热消去与恢复

当所关注的物理过程涉及到自电离时，由于连续态的存在将使得对态系数含时演化的数值求解变得复杂。一种常用的简化数值计算的方式是将连续态视为一系列准分立态，各态在时域上具有一定衰减率，使得在其频谱上互相重叠以实现连续态“准连续”，如文献 [61] 和 [63] 中所述。但在原文献中，该方法对 XUV 激发过程采用了微扰近似，只适用于低强度的 XUV 脉冲，无法处理强场过程。

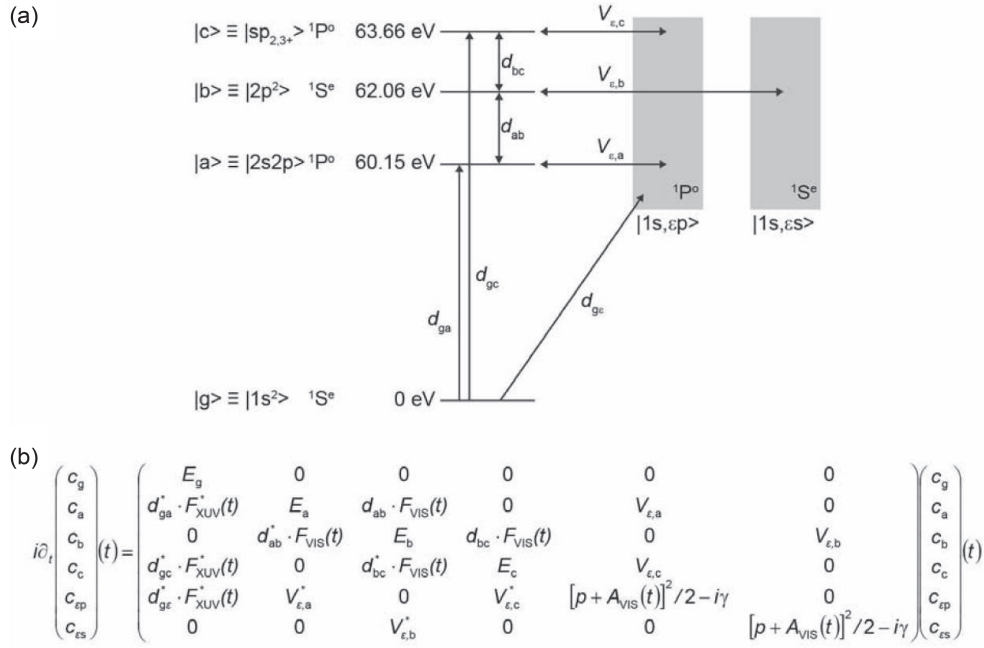


图 2-1 含自电离态及连续态的少能级模型^[61]。(a) 能级结构及耦合方式示意图。(b) 态系数含时演化满足的矩阵方程。

其次，计算弱场激发情形时的自然线型与 Fano 的解析公式预言结果不一致，在实际计算中不能直接使用现有的理论参数，需对部分参数进行适当调节以使得计算结果与预期线型匹配。另一种是将连续态视为单个频谱极宽的分立态，如文献中 [79--81] 所述。但此方法下该“连续态”在时域衰减极快，无法用于电子谱的模拟。在本节中，我们介绍并使用绝热消去连续态 (adiabatic elimination of the continuum) 的方法，以文献 [61] 中所关注的物理过程为例，并与其计算结果相对比以验证算法的适用性。能级示意图如图 2-1(a) 所示，系统的波函数可展开为

$$|\Psi(t, \tau)\rangle = e^{-iE_g t} c_g(t, \tau) |g\rangle + e^{-i(E_g + \omega_X)t} [c_a(t, \tau) |a\rangle + c_b(t, \tau) |b\rangle + c_c(t, \tau) |c\rangle] + \int c_p(t, \tau) |1s\epsilon p\rangle dE_p + \int c_s(t, \tau) |1s\epsilon s\rangle dE_s. \quad (2-11)$$

系统的 Hamilton 量表达式为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \hat{d}[E_X(t) + E_L(t)], \quad (2-12)$$

其中 \hat{d} 为偶极算符， $E_X(t)$ 和 $E_L(t)$ 分别为 XUV 和 NIR(或 VIS) 脉冲电场。Hamilton 量对角项为与能级结构相关的矩阵元，其表达式为

$$\begin{aligned} \langle g|\hat{H}_0|g\rangle &= E_g, & \langle a|\hat{H}_0|a\rangle &= E_a, \\ \langle b|\hat{H}_0|b\rangle &= E_b, & \langle c|\hat{H}_0|c\rangle &= E_c, \\ \langle E|\hat{H}_0|E_p\rangle &= E\delta(E - E_p), \\ \langle E|\hat{H}_0|E_s\rangle &= E\delta(E - E_s). \end{aligned} \quad (2-13)$$

自电离态与相应的连续态间的组态相互作用

$$\langle a|\hat{H}_0|E_p\rangle = V_a, \quad \langle b|\hat{H}_0|E_s\rangle = V_b, \quad \langle c|\hat{H}_0|E_p\rangle = V_c. \quad (2-14)$$

XUV 及 NIR 脉冲作用下，能级间跃迁对应的非零矩阵元为

$$\begin{aligned} \langle g|\hat{d}|a\rangle &= d_{ga}, & \langle g|\hat{d}|c\rangle &= d_{gc}, & \langle g|\hat{d}|E_p\rangle &= d_{gp}, \\ \langle a|\hat{d}|b\rangle &= d_{ab}, & \langle b|\hat{d}|c\rangle &= d_{bc}. \end{aligned} \quad (2-15)$$

需要注意的是，为了保持与文献 [61] 中所考虑的过程一致，这里忽略了在 NIR 脉冲作用下自电离态与连续态间的跃迁以及连续态之间的跃迁。态系数的含时演化可通过将波函数 (2-11) 带入 Schrödinger 方程 (2-1) 中求解，其表达式为

$$i\dot{c}_g(t) = -F_X(t)[d_{ga}c_a(t) + d_{gc}c_c(t) + \int d_{gp}c_p(t)dE_p], \quad (2-16a)$$

$$i\dot{c}_a(t) = -d_{ag}F_X^*(t)c_g(t) + [E_a - (E_g + \omega_X)]c_a(t) + \int V_a c_p(t)dE_p - d_{ab}E_L(t)c_b(t), \quad (2-16b)$$

$$i\dot{c}_p(t) = -d_{pg}F_X^*(t)c_g(t) + V_a c_a(t) + V_c c_c(t) + [E_p - (E_g + \omega_X)]c_p(t), \quad (2-16c)$$

$$i\dot{c}_b(t) = -d_{ba}E_L(t)c_a(t) + [E_b - (E_g + \omega_X)]c_b(t) + \int V_b c_s(t)dE_s - d_{bc}E_L(t)c_c(t), \quad (2-16d)$$

$$i\dot{c}_s(t) = V_b c_b(t) + [E_s - (E_g + \omega_X)]c_s(t), \quad (2-16e)$$

$$i\dot{c}_c(t) = -d_{cg}F_X^*(t)c_g(t) - d_{cb}E_L(t)c_b(t) + [E_c - (E_g + \omega_X)]c_c(t) + \int V_c c_p(t)dE_p. \quad (2-16f)$$

由于涉及到连续态态系数对能量的积分，对上述微分方程组的直接求解较为困难。考虑到系统的总布居守恒，且连续态能量跨度较大，对连续态做绝热消去，认为其与束缚态相比时域演化较慢，即 $\dot{c}_p(t) = \dot{c}_s(t) = 0$ 。连续态态系数表达式为

$$c_p(t) = \frac{V_a c_a(t) + V_c c_c(t) - d_{pg}F_X^*(t)c_g(t)}{E_g + \omega_X - E_p}, \quad (2-17a)$$

$$c_s(t) = \frac{V_b c_b(t)}{E_g + \omega_X - E_s}. \quad (2-17b)$$

其对能量的积分可借助下式得出

$$\int \frac{1}{E_g + \omega_X - E} dE = -i\pi\delta(E_g + \omega_X - E) + P \int \frac{1}{E_g + \omega_X - E} dE, \quad (2-18)$$

其中 P 表示 Cauchy 主值积分。简要起见，我们在该实例下只考虑共振部分，忽略主值积分的贡献，即认为跃迁矩阵元不随能量变化（XUV 光场作用下 ac Stark

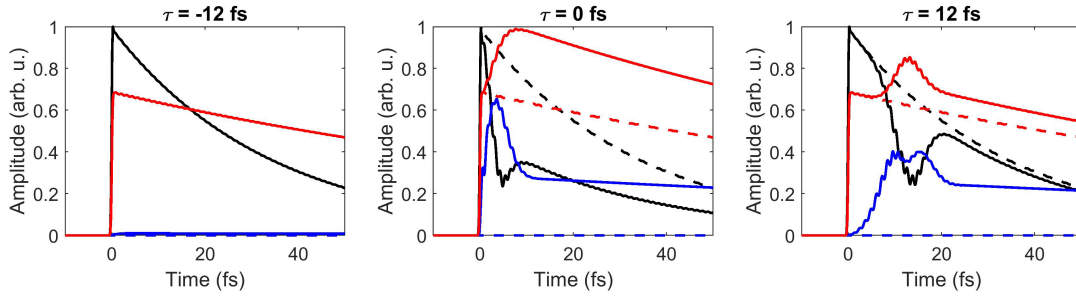


图 2-2 $2s2p$ (黑线)、 $2p^2$ (蓝线) 和 $sp_{2,3+}$ (红线) 三个自电离态系数幅度 $|c_n(t)|$ 在不同实验延迟下随时间的演化, 无 VIS 脉冲作用下的结果由图中相应颜色的虚线所示。计算结果与文献中采用少能级模型, 并将连续态视为一系列准分立态的计算结果保持一致。

移动为零)。借助描述 Fano 线型不对称系数 q 以及宽度 Γ 的定义

$$q = \frac{d_{ge}}{\pi d_{g\epsilon} V}, \quad \Gamma = 2\pi |V|^2, \quad (2-19)$$

束缚态系数满足的微分方程可简化为如下矩阵形式

$$i \begin{pmatrix} \dot{c}_g \\ \dot{c}_a \\ \dot{c}_b \\ \dot{c}_c \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} -i\pi |d_{gp}|^2 |F_X|^2 & -d_{ga}(1 - \frac{i}{q_a}) F_X & 0 & -d_{gc}(1 - \frac{i}{q_c}) \\ -d_{ag}(1 - \frac{i}{q_a}) F_X^* & \Delta_a - i\frac{\Gamma_a}{2} & -d_{ab} E_L & -i\pi V_a V_c \\ 0 & -d_{ba} E_L & \Delta_b - i\frac{\Gamma_b}{2} & -d_{bc} E_L \\ -d_{cg}(1 - \frac{i}{q_c}) F_X^* & -i\pi V_a V_c & -d_{cb} E_L & \Delta_c - i\frac{\Gamma_c}{2} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} c_g \\ c_a \\ c_b \\ c_c \end{pmatrix}, \quad (2-20)$$

其中 $\Delta_n = E_n - (E_g + \omega_X)$, $n = a, b, c$ 为共振能量与 XUV 中心频率间的差值。

为了检验模型的可靠性, 我们考虑了文献 [61] 中的物理过程, 并在计算中采用了与其相同的脉冲 (VIS: 7 fs, 730 nm, 3×10^{12} W/cm²) 及能级参数, 图 2-2 展示了自电离态系数幅度 $|c_n(t)|$ 在时域的演化。 $2s2p$ 与 $sp_{2,3+}$ 态由于与连续态 $1s, \epsilon p$ 间相干耦合导致其幅度在时域约 1 fs 的振荡, 以及与 VIS 作用过程中布居的转移, 均与文献 [61] 中结果定量符合。

进一步地, 系统单原子极化响应可通过以下表达式得出

$$\begin{aligned} d(t) &= \langle \Psi(t) | \hat{d} | \Psi(t) \rangle \\ &= e^{-i\omega_X t} \left[c_g^*(t) c_a(t) d_{ga} \left(1 - \frac{i}{q_a}\right) + c_g^*(t) c_c(t) d_{gc} \left(1 - \frac{i}{q_c}\right) + i\pi d_{ga} |c_g(t)|^2 |d_{gp}|^2 F_X^*(t) \right. \\ &\quad \left. + c_a^*(t) c_b(t) d_{ab} + c_b^*(t) c_c(t) d_{bc} + \text{c.c.}, \right] \end{aligned} \quad (2-21)$$

右式中第一项来源于基态与激发态间的耦合, 以 XUV 载波频率 ω_X 振荡成分已被提取出; 第二项和第三项来源于 VIS 脉冲作用下自电离态间的耦合。图 2-3 展示了采用已知的原子能级参数, 弱 XUV 激发, 无 VIS 作用下计算所得吸收线型, 其与采用 Fano 解析模型计算结果几乎完全一致。

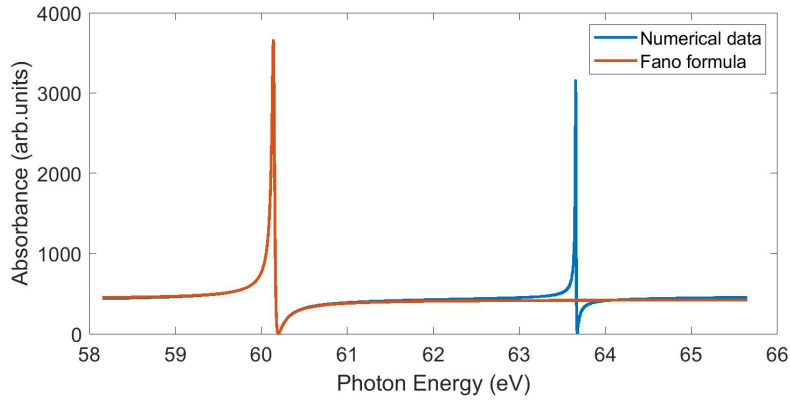


图 2-3 弱 XUV 激发, 无 VIS 作用下的吸收线型 (蓝线), 其与 Fano 解析模型预言结果 (橙线, 此处仅关注 $2s2p$ 态) 一致。

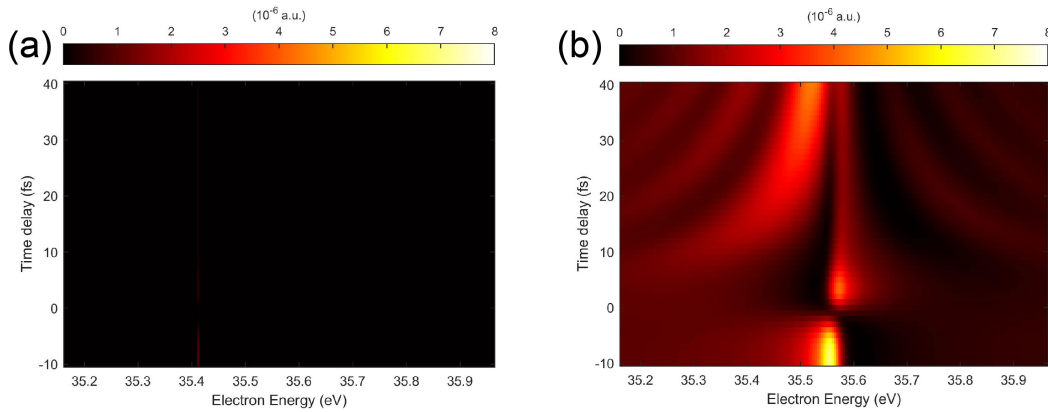


图 2-4 连续态恢复 (b) 与否 (a) 情形下电子能谱随时间延迟的演化。脉冲及系统参数同文献 [82], (b) 图计算结果与该文献中 Fig. 2(a) 保持一致。

值得一提的是, 对于比跃迁寿命长得多的激发脉冲, 其光谱带宽很窄。此情形下, 由系统的总布居守恒, 电离谱强度可通过计算基态布居的减少得出。而对于阿秒瞬态吸收常用的极紫外脉冲, 其宽带频谱能够激发很大能量区间的背景连续态, 这部分态系数信息的缺失将导致对系统的描述是不完全的。而波函数连续态的系数可通过将已求得的束缚态态系数代入原微分方程组 (2-16c) 及 (2-16e) 中计算得出, 该过程称为连续态恢复 (continuum retrieval)^[82]。至此, 系统波函数的含时演化已完全得出。

为了检验算法的正确性, 我们考虑了文献 [82] 中的物理过程, 并在计算中采用了与其相同的脉冲及能级参数。图 2-4 展示了连续态恢复与否情形下的瞬态光电电子能谱。可以明显看出, 仅考虑连续态绝热消去时的计算结果无法反映真实物理过程, 连续态系数的进一步恢复对于研究超快光电子过程是十分必要的。

在连续态的恢复中, 由于不可能考虑无限多的能量, 不可避免地需将连续态

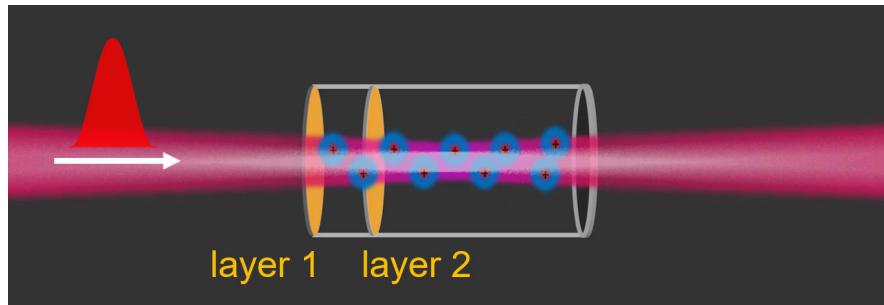


图 2-5 脉冲光场与宏观共振介质的相互作用。考虑沿脉冲传播方向上的两层原子，由于极化响应能激发产生新的电场，与 layer 2 和 layer 1 相互作用的电场不同，相应的动力学演化存在差异。因此，实际情形要求将介质分层处理，并考虑脉冲在其间的传播。

视为一系列有限数目的准分立能级。在将其带入极化响应的表达式，计算系统的吸收光谱时，会导致人为的 **continuum revival** 的出现 (artefact)，影响计算结果。为了消除这种效应对结果的影响，在计算中可对准分立能级能量附加一恰当虚部，不仅能使其态系数在时域上衰减，还能使得能级在频域展宽、相互重叠，从而实现频谱准连续。

2.3 脉冲传播效应

正如高次谐波产生中需要足够的工作介质，优化相位匹配以得到足够的光子通量。吸收光谱中测量的也绝非单个粒子的响应，采用足够光学厚度的靶介质以在透射光谱中观测到明显的吸收信号、提高数据的信噪比，在实际的实验测量中是十分必要的。

对于线性介质，穿过一定距离后的透射光束强度满足 **Beer-Lambert** 定律。随着激光的问世以及光强的不断提高，光场与物质的非线性相互作用逐渐显露出来。介质对入射光的吸收不仅依赖于介质密度和长度，还依赖于入射光强，以及光与物质相互作用的具体形式。考虑松聚焦的激光光束（忽略其空间聚焦效应），与光路中所有原子相互作用的电场可近似视为一致。外场相同故 **Hamilton** 量也一致，整个系统的动力学演化可由其中任意单个原子的响应来描述，即著名的单原子响应近似，其已被成功应用于一系列实验及理论研究。在此图像中，介质对入射电场的吸收可通过式 (2-6) 近似得出。然而，上述物理图像仅适用于稀薄气体极限情形，由 **Maxwell** 电磁理论，外场激发的极化响应能驱动产生新的电场。对于实际情形，脉冲在介质中与空间上不同位置的原子次序相互作用，如图 2-5 所示。先被激发的原子产生的极化响应能驱动产生新电场，其与原电场叠加后同后续原子相互作用。由此，考虑脉冲在介质中传播带来的影响，纳入光场与介质集体相互作用的贡献是十分必要的。

激光脉冲在介质中的传播满足 Maxwell 方程组

$$\begin{cases} \nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t} \\ \nabla \times H = J + \frac{\partial D}{\partial t} \\ \nabla \cdot D = \rho_f \\ \nabla \cdot B = 0 \end{cases} \quad (2-22)$$

上式中 E 和 H 分别为电场强度矢量和磁场强度矢量, J 为电流密度矢量, ρ_f 为自由电荷密度。 D 和 B 分别为电位移矢量和磁感应强度矢量, 其满足

$$\begin{cases} D = \epsilon_0 E + P \\ B = \mu_0 H + M \end{cases} \quad (2-23)$$

利用

$$\nabla \times (\nabla \times E) = \nabla(\nabla \cdot E) - \nabla^2 E, \quad (2-24)$$

可得

$$\nabla^2 E - \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (J + \epsilon_0 \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial P}{\partial t}) = \frac{\partial}{\partial t} \nabla \times M + \nabla(\nabla \cdot E), \quad (2-25)$$

整理可得下式

$$(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) E = \mu_0 (\frac{\partial J}{\partial t} + \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}) + \frac{\partial}{\partial t} \nabla \times M + \nabla(\nabla \cdot E). \quad (2-26)$$

特别地, 在各项同性介质中传播时, $J = 0$, $\rho_f = 0$, $M = 0$, 上式可简化为

$$(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) E = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P. \quad (2-27)$$

若仅考虑 x 方向上的传播, 在原子单位下, 可得如下标量方程

$$(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) E = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P. \quad (2-28)$$

在沿 x 方向, 与脉冲共同传播的参考系 $t = t_L - x/c$ 中, 电场和极化响应傅里叶变换为

$$E(x, t_L) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \tilde{E}(x, \omega) e^{i\omega(t_L - x/c)} d\omega + \text{c.c.}, \quad (2-29a)$$

$$P(x, t_L) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \tilde{P}(x, \omega) e^{i\omega(t_L - x/c)} d\omega + \text{c.c.} \quad (2-29b)$$

带入式 (2-28), 可得

$$(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - 2i\frac{\omega}{c} \frac{\partial}{\partial x}) \tilde{E}(\omega, x) = -4\pi \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{P}(\omega, x). \quad (2-30)$$

当电场幅度在给定频率 ω 处的空间导数在一个波长 $2\pi c/\omega$ 内变化平缓时 (slowly evolving wave approximation, 慢变波近似), 可以忽略上式中关于空间位置的二阶导^[78], 从而简化得到如下的微分方程

$$\frac{\partial}{\partial x}\tilde{E}(\omega, x) = -2\pi i \frac{\omega}{c}\tilde{P}(\omega, x). \quad (2-31)$$

特别地, 当系统的极化响应与驱动脉冲电场成正比, 即 $\tilde{P}(\omega, x) = \chi(\omega, x)\tilde{E}(\omega, x)$ 时, 透射电场表达式为

$$\tilde{E}(\omega, x) = \tilde{E}(\omega, x_0) \exp\left\{-2\pi i \frac{\omega}{c} \int_{x_0}^x \chi(\omega, x') dx'\right\}. \quad (2-32)$$

对各向同性均匀介质, 透射光谱满足

$$|\tilde{E}(\omega, x)|^2 = |\tilde{E}(\omega, x_0)|^2 e^{-4\pi \frac{\omega}{c} (x-x_0) \text{Im}[\chi(\omega)]}. \quad (2-33)$$

上式即为线性吸收的 Beer-Lambert 定律。但对于更一般的情形, $\tilde{P}(\omega, x)$ 并不与 $\tilde{E}(\omega, x)$ 严格成正比, 传播方程需数值求解。在后文中, 我们主要通过 Schrödinger 或 Liouville 方程求得系统的动力学演化, 并通过式 (2-31) 考虑脉冲在介质中沿传播方向的空间演化, 以探究宏观介质的超快动力学过程, 并反过来研究传播过程中介质和外场对激发脉冲的整形。

第三章 铷原子蒸气的飞秒吸收光谱研究

3.1 引言

光谱中吸收谱线的形状蕴含了物质丰富的结构和动力学信息。一般来说,孤立的束缚态对应于关于共振能量左右对称的 Lorentzian 线形,分立态与连续态间的耦合导致了非对称的 Fano 谱线的出现。在 2013 年, C. Ott 等人从实验上证明了外激光场对 He 原子自然吸收线形调控的可能。许多理论和实验学者开展了大量建立频谱形貌与时域偶极响应间联系的研究工作^[60,83-85],吸收线型随时间延迟的变化还被用于实时观测动力学演化过程^[57,86-88]。

尽管如此,目前绝大多数阿秒瞬态吸收的实验研究中均假定激发 XUV 脉冲短而弱,主要采取微扰近似处理其与介质的相互作用。其次,对光吸收过程的分析依赖于单原子响应近似,认为光密度 OD 直接正比于频域偶极响应的虚部,如式 (2-7) 所示。后一近似忽视了脉冲在介质中的传播带来的影响,仅适用于稀薄介质极限情形。迄今仅有少数研究工作关注了光吸收中的宏观传播效应^[78,82,89-95],对简单体系吸收线型从稀薄气体极限到高密度情形下的系统研究对于探究复杂、致密介质中的超快动力学过程具有重要价值。

本章所述的研究工作中采用了商用的飞秒激光脉冲,开展了 Rb 原子蒸气的静态及瞬态吸收测量。通过调节激光脉冲的强度及 Rb 原子密度,揭示了弱场激发及稀薄气体近似的局限性,并探究了强激光场及传播效应对吸收光谱形貌的影响。

3.2 实验装置

该部分实验工作所用激光器为美国 Quantronix 公司生产的商用飞秒激光系统,增益介质为 Ti:Sapphire,由于其已于 2020 年退役,本文不对其结构及工作原理进行详细介绍。其典型的输出脉冲参数为:脉冲宽度 30 fs,中心波长 800 nm,单脉冲能量 3 mJ,重复频率 1 kHz。

图 3-1 展示了搭建的泵浦-探测实验装置结构示意图。入射激光首先由分束器 (1) 分为平行传播的泵浦光和探测光,两束激光分别经反射镜 (2)、(3) 反射后由同一凹面反射镜 (5) 聚焦至待测样品 (7) 上。通过电动位移台 (4) 调节反射镜 (2) 的前后位置,可连续调节泵浦光光程,从而控制泵浦光相对于探测光到达待测样品的时间延迟。光谱仪 (12) 用于收集与样品作用后探测光的透射光谱信号。CCD 相机 (16) 用于检测焦点处的光斑位置,两束光在焦点处的时间和空间重合

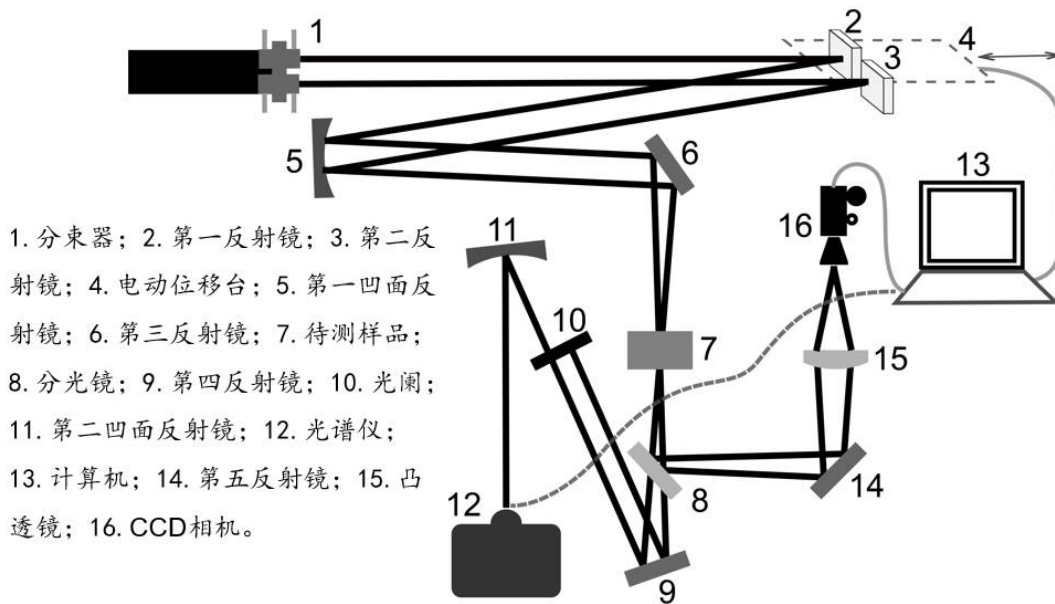


图 3-1 同色非共线泵浦-探测装置原理示意图。

可由其收集到的最高衬比度干涉条纹来表征。该装置结构紧凑，实际调节方便，实验光路与传统共线泵浦探测光路相比非常简单，保证了光束空间重合和时间重合的稳定性。同时，基于反射光学的原理，尽可能避免了光束透过镜片引入的像差，保证了激光脉冲相位的稳定性。其次，采用非共线几何构型，自然地实现了泵浦和探测脉冲与样品作用后的空间分离。

在本章的实验工作中，待测样品为铷原子单质（含自然丰度 72% ^{85}Rb 及 28% ^{87}Rb ）。其存放于一有效长度为 22 mm，两端 1.5 mm 厚的 BK7 玻璃气室中，室温下为固态。通过一套自制的加热及控制系统，气室的温度连续可调。文献 [96] 中给出了铷原子气压对温度的依赖关系，结合理想气体状态方程，可估算出相应的原子密度。在靶室温度为 70、120 和 160 °C 时其对应的原子密度分别为 7.4×10^{11} 、 2.0×10^{13} 以及 $1.6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 。激光脉冲的光谱信息通过一高分辨光栅光谱仪 (McPerson 2061) 收集。通过安装合适刻线数的衍射光栅并选择恰当的中心波长，光谱仪所探测的波长范围被设置为 778.50-796.52 nm，其恰好覆盖了铷原子两条单电子跃迁 $5s^2S_{1/2} \rightarrow 5p^2P_{1/2}$ ($|1\rangle \rightarrow |2\rangle$), 794.76 nm) 以及 $5s^2S_{1/2} \rightarrow 5p^2P_{3/2}$ ($|1\rangle \rightarrow |3\rangle$), 780.03 nm)。

实验中所用的光谱仪由美国 McPherson 公司生产，基于对称式 Czerny-Turner 结构设计。其配备了两块刻线数分别为 1200 和 2400 g/mm 的闪耀光栅，对应的可测量光谱范围分别为 185-1300 nm 和 185-650 nm。聚焦长度为 1 m，具有高分辨率和高通量特点。通过步进电机旋转光栅，可调节特定波长的光通过出射端被收集，从而调节探测波长范围。在实验中，一般选用 Hg 灯对光谱仪进行波长校

准。

3.3 静态吸收研究

在本节介绍的静态吸收研究工作中，实验上仅采用一束飞秒激光脉冲与靶气体相互作用，该脉冲强度连续可调。通过测量其透射光谱信号，用于研究介质吸收特性的变化，实验装置原理如图 3-2(a) 所示。

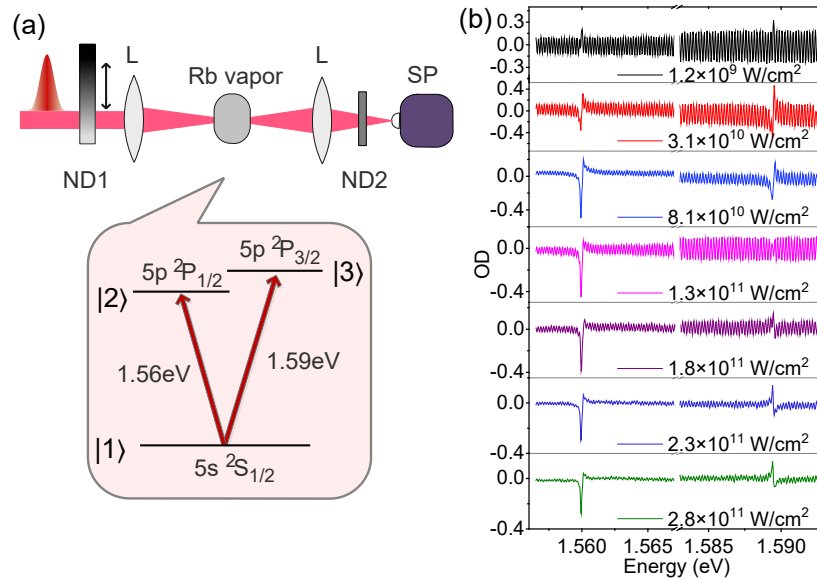


图 3-2 (a) 静态吸收实验装置示意图。S: 聚焦透镜; SP: 光谱仪; ND1 及 ND2: 中性密度衰减片。(b) 在靶室温度为 70 °C 下 (稀薄气体极限), 实验测得的吸收光谱随脉冲强度的变化。

3.3.1 自调制效应

通过将靶室由室温加热至 70 °C, 金属 Rb 由固态变为气态, 并对应于较低的原子密度, 首先研究了单原子响应下吸收线型对驱动脉冲强度的依赖, 实验测量结果如图 3-2(b) 所示。弱场激发近似下, 该两条跃迁在无附加外场扰动时应呈现出自然的 Lorentzian 吸收线型, 光谱形貌关于跃迁频率左右对称。然而在实验结果中, 通过增加激光强度, 吸收线型不再对称, 呈现为类似于 Fano 线型。强度依赖的线型表明系统的极化响应受到了驱动激发脉冲的相位调制, 弱场激发近似存在一定的局限性。在实际情形下, 整个脉冲包络下的电场均贡献了原子激发。但旨在对该自调制效应提供一直观的物理解释, 我们将驱动脉冲人为分为激发和控制两部分, 如图 3-3(a) 所示。在该模型中, 系统的极化响应在激光包络峰值处诱发, 随后的控制部分诱导激发态产生瞬态能级偏移。由于相互作用时间 T_c 短

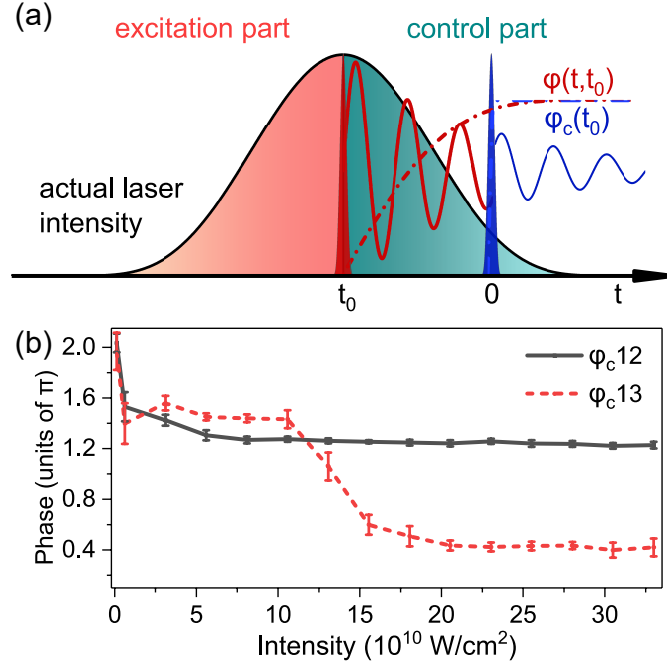


图 3-3 (a) 解析模型。实际的激光脉冲被人为分为激发（红色阴影区）和控制（绿色阴影区）两部分，系统的偶极相应于在脉冲包络峰值处被激发，并被后续的控制部分施加相位调制。自调制效应被视为 $t = 0$ 处的瞬时相位阶跃（蓝色虚线），而非累积的依赖于强度演化（红色点划线）。(b) 从实验结果中提取的相位随脉冲强度的演化，其中误差棒代表数据拟合中的标准差。

于脉冲的持续时间，与激发态的退相干时间相比可忽略不计，该相位调制可视为 $t = 0$ 时刻的瞬时相位阶跃。由此，扰动下单一跃迁偶极响应函数可由下式描述

$$d(t, t_0) \propto \begin{cases} 0 & t < t_0 \\ ie^{(-i\omega_0 - \Gamma/2)(t-t_0)} & t_0 \leq t < 0. \\ ie^{(-i\omega_0 - \Gamma/2)(t-t_0)} e^{i\varphi_c(t_0)} & 0 \leq t \end{cases} \quad (3-1)$$

式中 ω_0 和 Γ 分别表示跃迁频率以及衰减率。为了包含多普勒展宽、碰撞展宽等过程对实际吸收谱线宽度的贡献，在模拟中取 $\Gamma_{12} = \Gamma_{13} = 1/7 \text{ ps}^{-1}$ 。在此实验条件下取 $t_0 = -30 \text{ fs}$ ，并已证明该值的微小改变不会对后续结果造成明显影响。在时域上，系统的偶极响应最初为自由演化，紧接着在 0 时刻被附加一自诱导的相位，而后携带该相位继续自由演化。通过拟合实验数据与式 (2-7) 及式 (3-1) 的傅里叶变换（中心为 $t = t_0$ ），可提取得相位变化 φ_{c12} 和 φ_{c13} ，如图 3-3 所示。该拟合通过一标准的算法 *Mathematica*'s FindFit (method: NMINIMIZE) 实现，通过 $OD(\omega)$ 与 φ_c 的关系给出全局最好拟合及相应的标准误差。由于非共振部分贡献很小，拟合过程中仅纳入了共振能量附近的数据。这些人为引入的相位反映了激光与介质相互作用的强度。图 3-3 中相位随脉冲强度的增加而大致单调地下降，

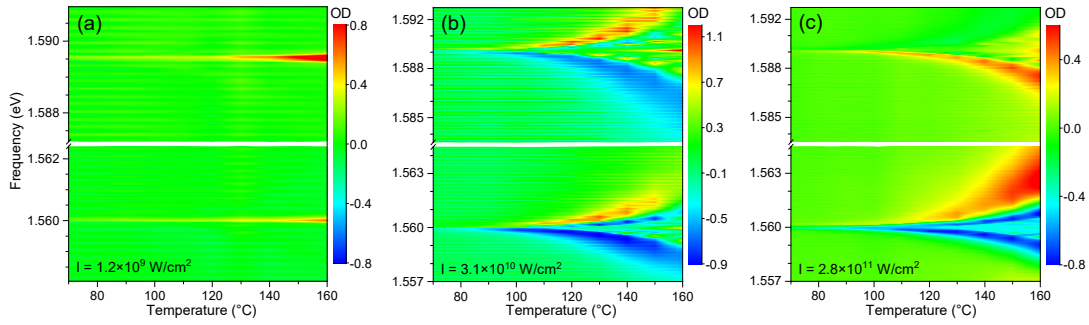


图 3-4 吸收谱线随靶室温度的变化。图中脉冲能量分别固定为 $I = 1.2 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ (a), $3.1 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ (b) 以及 $2.8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (c)。随着温度的增加, 图 (a) 中两跃迁线形略微展宽, 但仍关于中心频率对称。相较之下, 图 (b) 和 (c) 中的谱线轮廓显示出明显的展宽, 并在较高温度下出现了复杂的频谱子结构。

更强的激光脉冲总体上能引起更明显的调制效应。由于 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 跃迁较强, 对外场的变化更为敏感, 由此 φ_c 13 展现出了更为明显的强度依赖。然而, 两跃迁间更加复杂的高阶过程如 Raman 效应等, 以及激光场对铷原子激发态进一步的激发或电离等机制的存在, 会引起相位并非单调演化。相位在更高强度下几近恒定, 表明偶极子对外场变化变得愈加不敏感。对该现象更为细致的分析需要更加复杂的数值计算的协助, 并在其中包含更多的原子能级以及电离等效应的贡献。

3.3.2 传播效应

为了探究吸收光谱形貌对介质密度的依赖, 我们进一步开展了不同靶室温度下的测量。图 3-4 展示了不同激光强度下的测量结果。当激光强度较低, 其诱导的相位调制效应可忽略时, 系统自然的 Lorentzian 线型随温度的提高略有展宽, 但光谱形状仍关于共振能量对称, 如图 3-4(a) 所示。而在图 3-4(b) 和 3-4(c) 中, 吸收谱呈现出了异常丰富的光谱结构。上述情形相应的吸收谱线的演化规律如图 3-5(a) 和 3-5(c) 所示。随着气室温度的逐渐增加, 谱线的轮廓逐渐展宽, 吸收峰和谷逐渐远离共振能量, 而谱线形状大致维持不变。该现象表明脉冲诱导的自调制相位近似与靶室温度无关。随后, 峰位中心出现吸收子结构并逐渐向外移动。靶室温度的进一步升高使得子结构幅度进一步增强甚至出现分裂, 使其变得与初始的 Fano 特征峰强度相当抑或更甚, 总的光谱形状变得难以直观表征。

靶室内部的 Rb 原子密度随着温度的升高而逐渐增加, 介质的光学厚度也随之相应增大。以上所观测到的谱线对原子密度的依赖与近年间阿秒瞬态吸收测量结果^[93,94] 非常类似, 表明其中存在类似的物理机制。对该过程的模拟原则上可以通过数值求解含时薛定谔 Schrödinger 方程以及 Maxwell 传播方程来实现。但在实际操作中, 对于衰减时间长达皮秒的跃迁, 由于所需计算时间过大, 时域积

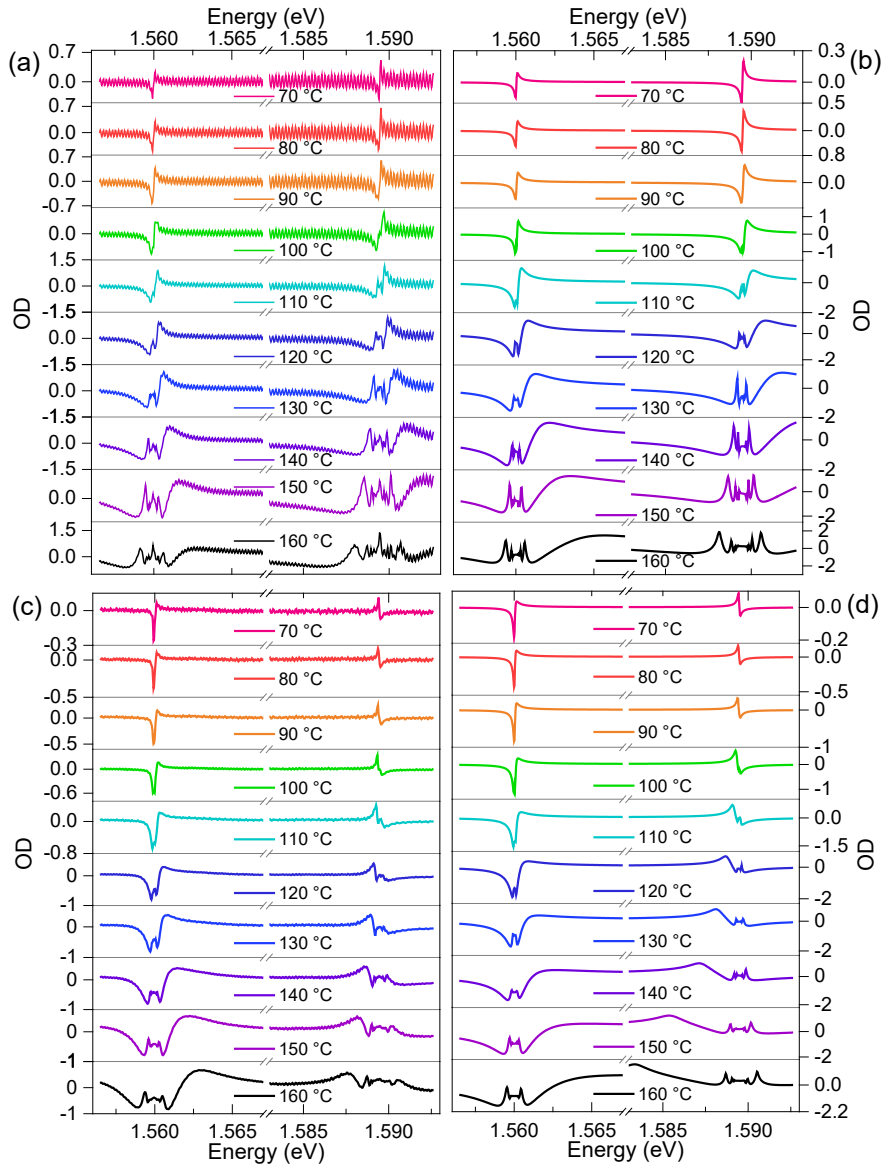


图 3-5 固定脉冲强度 [(a), (b) $3.1 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$, (c), (d) $2.8 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$] 下, 实验测量 [(a), (c)] 和理论模拟 [(b), (d)] 的吸收线形随靶气体温度的变化。Fano 谱线的特征形貌在足够高的靶室温度下出现了明显的失真。

分的方法不太可行。

A. N. Pfeiffer 等人在 2013 年提出了一种从频域出发的方法^[92]。该方法是上一小节中所用模型的拓展, 并且超越了简单的单原子响应近似。该方法从密度矩阵演化的 Liouville-von Neumann 导出, 并考虑了脉冲在介质中的传播所引入的宏观传播效应, 其核心为极化响应在频域的下述解析表达式

$$d(\omega, x, t_0) = \chi(\omega)E_e(\omega, x, t_0) + i\chi(\omega) \frac{(L-1)Q(x, t_0)}{\sqrt{8\pi N\mu^2}}. \quad (3-2)$$

该解析公式由于在频域中表示, 无需进行时域积分。在原研究工作中^[92], t_0 (δt)

代表了瞬态吸收实验中的时间延迟。在此情形下，将 t_0 视作激光诱导相位调制发生的有效时间，与前述分析一致。式 (3-2) 包含了宏观传播效应，其中 N 代表原子数密度， x 为传播方向上的空间坐标（ χ 、 L 和 Q 将在下文中定义）。对方程的求解需要知道介质内任一位置处的激发脉冲电场 E_e ，其在脉冲传播过程中会逐渐整形。由此，在该框架下仍需开展沿脉冲传播方向上的数值积分，但计算量已被显著降低。脉冲在沿传播方向上的演化可由以下波动方程描述^[78]

$$\frac{\partial}{\partial x} E_e(\omega, x, t_0) = -2\pi i \frac{\omega}{c} d(\omega, x, t_0). \quad (3-3)$$

数值积分上式之后，各空间位置处的光密度可由下式得出

$$\text{OD}(\omega, x, t_0) = \ln \left[\frac{|E_e(\omega, 0, t_0)|^2}{|E_e(\omega, x, t_0)|^2} \right]. \quad (3-4)$$

当脉冲强度较低时，系统的极化响应线性依赖于脉冲光场，式 (3-2) 中的第一部分足以描述。线性的极化响应可通过极化率 $\chi(\omega)$ 求出，后者可由下式近似

$$\chi(\omega) = \frac{2N\omega_0\mu^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\Gamma\omega}. \quad (3-5)$$

当仅考虑式 (3-2) 中的线性成分时，式 (3-3) 的解析表达式能重现 Beer-Lambert 定律。在更高的脉冲能量下，极化响应受到额外调制，由 (3-2) 中第二项表示。 L 为极化响应受到的调制，在该工作中被视作纯相位变化，即 $L = e^{-i\varphi_c(t_0)}$ ，其中 $\varphi_c(t_0)$ 为 70 °C 下提取的相位。为了施加该相位调制，需要已知传播距离 x 后 t_0 时刻的电场表达式，其由 $Q(x, t_0)$ 参数表示^[92]。

$$Q(x, t_0) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \chi(\omega) E_e(\omega, 0, t_0) e^{-2\pi i \frac{\omega}{c} \chi(\omega) x} d\omega \quad (3-6)$$

描述了调制时刻系统的极化响应形式。文献 [92] 中引入了一用于评估宏观传播效应的重要性的参数 $p_1(\omega) = |\chi(\omega)|\omega x/c$ ，其衡量了传播过程中频域累积相位的绝对值。当 $p_1 \ll 1$ 时，传播效应的贡献可忽略，而其取值在 1 附近时其重要性开始显现。对于当前情形， $p_1(\omega_{12})$ 和 $p_1(\omega_{13})$ 在靶室温度约为 120 °C 达到该临界值。该结论也在图 3-4(b) 和 3-4(c) 中得到验证，其中吸收线型在 120 °C 时开始急剧变化。

为了理解传播效应如何引起光谱中一系列新特征的出现，研究脉冲在传播过程中的波形演化是十分必要的。Crisp^[97] 和 Lamb^[98] 在上世纪 70 年代首先讨论了在线性响应情形时，超短脉冲如何在介质中传播。在传播过程中，脉冲在时域将被逐渐展宽并在尾部形成一个衰减的后沿，其衰减时间由吸收线宽的倒数决定。经过进一步的传播，其后沿中将会形成越来越短的子脉冲，并且每个子脉冲中的电场与前一个间相位差为 π 。起初，共振激发新产生的脉冲后沿的电场与

驱动光场间的相位差为 π ，两者间的相消干涉引起了共振能量处的光谱凹陷，即 Lorentzian 吸收线的形成。然而，在持续的传播过程中，系统极化响应所经历的附加的相位调制将影响其诱导的新的光场的产生，使其与驱动光场间的相位差不再为 π ，导致了异常的光谱特征的出现。其特征线形不再随着介质光学厚度的增加线性演化，而会进一步引起更复杂结构的产生。

在计算中，我们独立考虑两跃迁谱线，并微调原子密度以及衰减率以更好地匹配实验测量的线形结果。图 3-5(b) 和 3-5(d) 中的模拟结果展示了密度依赖的传播效应对线形演化的影响。对所考虑的脉冲强度下，我们仅考虑了电偶极跃迁，两跃迁偶极矩的大小为： $\mu_{12} = 1.75$ ， $\mu_{13} = \sqrt{2}\mu_{12} = 2.47$ ^[99]。 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 跃迁更大的偶极矩导致了更明显的线形变化。总的来说，脉冲在共振介质中的传播将导致光场通过多次散射与原子系统间重新分配能量，产生新的吸收线形。除了更大的光谱展宽外，采用解析模型的计算结果几乎重现了实验结果中所有必要的特征。两者间的偏差可能源于在较高原子密度下，传播控制的寿命变得与相位调制的时间尺度相当，由此最终的线形比传播效应预测的更窄，与文献 [93] 中讨论结果类似。

有趣的是，此处对宏观传播效应的处理与上一小节中对稀薄介质情形下的模拟是自洽的。特别地，对于稀薄介质极限情形 ($x = 0$)，式 (3-2) 可简化为

$$d(\omega, 0, t_0) = \chi(\omega)E_e(\omega, 0, t_0) \left[1 + (L-1)e^{[i(\omega-\omega_0)+\Gamma/2]t_0} \right]. \quad (3-7)$$

除了对于极化响应的调制表达式互为共轭外（本质来源于不同的傅里叶变换形式），该式与式 (3-1) 等价。

3.3.3 数值结果

为了进一步证明以上结果，该小节中采用三能级模型开展了基于密度矩阵形式的数值计算，并在其中包含了脉冲的传播效应。原子系统由 3×3 的密度矩阵 $\hat{\rho}(t)$ 来表示，其在时域的动力学演化遵循 Liouville-von Neumann 方程

$$i\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = [\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)] - i\hat{\gamma} \circ \hat{\rho}(t). \quad (3-8)$$

其中，偶极近似下系统的 Hamilton 量表示为 $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 - \hat{\mathbf{M}}E(t)$ ， \hat{H}_0 为电子结构 Hamilton 量， $\hat{\mathbf{M}}$ 为偶极矩阵。 $\hat{\gamma}$ 为衰减矩阵，其包含了系统布居与相干的衰减。出于计算考虑，在此处选择 $\gamma_{22} = \gamma_{33} = 1/(600 \text{ fs})$ ，系统的极化响应可由下式给出

$$d(t) = N\text{Tr}[\hat{\rho}(t)\hat{\mathbf{M}}]. \quad (3-9)$$

为了突破单原子响应近似，需考虑了光场在 x 轴的传播，这里采用波动方程 (3-3) 来近似描述其空间演化。在每一空间位置处，首先数值求解 Liouville 方程 (3-8)

以求得系统的含时演化，并通过式 (3-9) 计算该处的极化响应。随后，将极化响应傅里叶变换至频域并带入式 (3-3) 中，以在空间上向前传播。经过一段传播距离后，系统的吸收线形可通过式 (3-4) 得出。在计算中，我们使用了三倍于实际温度所对应的原子密度，以更好地重现实验结果。

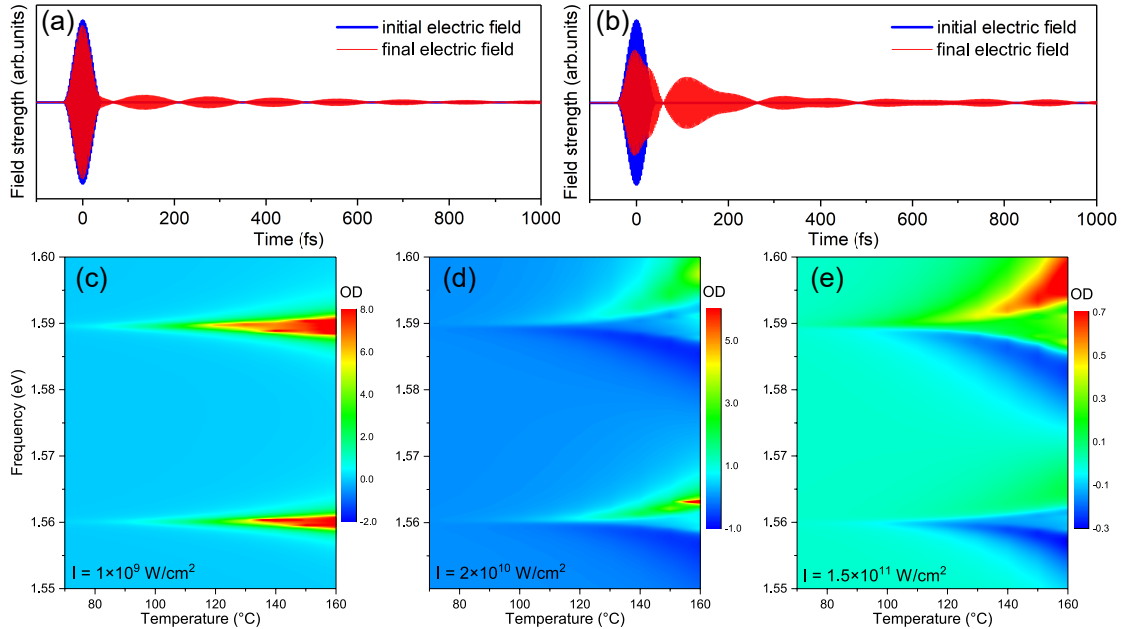


图 3-6 数值计算结果。脉冲强度为 $I = 1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ ，介质温度分别为 120°C (a) 和 160°C (b) 时，初始以及透过介质后的电场时域形貌对比。脉冲强度分别固定为 $I = 1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ (c)、 $2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ (d) 以及 $I = 1.5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (e) 时，理论计算的吸收光谱随靶室温度的演化。计算结果中展现出了与图 3-4(a)-(c) 中的实验结果类似的光谱形貌演化。

图 3-6 中展示了考虑传播效应后的数值结果。在图 3-6(a) 和 3-6(b) 中，电场在透过介质后时域被拉长，其后沿包含了一系列的子脉冲。较大的原子密度下形成的子脉冲幅度更大，但每一个子脉冲整体上较时域上前一个更弱。图 3-6(c)-(d) 中展示了与图 3-4(a)-(c) 中脉冲强度相当时的理论计算结果。诚然，数值与实验结果之间仍存在一定的偏差，但计算所得的光谱特征与实验结果已非常接近。上文中采用的解析模型依赖于首先从测量结果中提取相位信息，重建得到的相位能协助分析光谱调制效应、再现吸收线形。相较之下，此处的数值计算仅限于三能级系统近似下，往更高的 $5d^2D_{3/2,5/2}$ 能级间的跃迁，以及光致电离等效应都会影响实际线型结果。然而，这些因素超出了此工作的考虑范围。

进一步地，通过数值计算我们还发现 Rb 原子吸收线型还明显地依赖于驱动脉冲中心波长。图 3-7 展示了时域宽度为 30 fs ，峰值功率为 $2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ，不同中心波长的脉冲驱动下吸收线型计算结果。由于此方案的实验验证需要一台

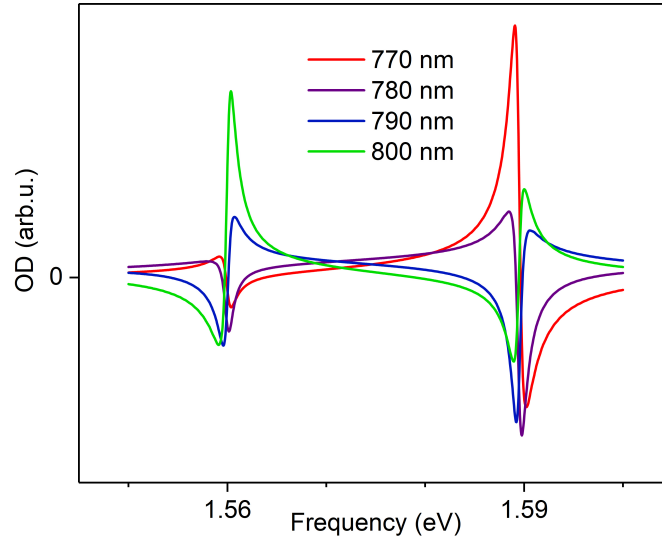


图 3-7 单原子响应近似下, 不同中心波长脉冲作用情形下的 Rb 原子介质吸收线型计算结果。

高性能光学参量放大器 (Optical Parametric Amplifier, OPA) 的参与, 这在当时的实验条件下是不可行的。尽管如此, 该计算结果启发了我们后续在理论上系统性地研究单束强激光场对原子吸收线型的调控, 这一工作将在下章中详细展开。

3.4 瞬态吸收研究

受上述研究结果的启发, 为了进一步实现对介质宏观吸收特性的时间分辨研究, 本节所述工作中在实验上附加了另一束泵浦脉冲, 其相较于探测脉冲到达气室的时间延迟可调, 正(负)时间延迟对应于探测脉冲后(先)于泵浦脉冲到达。实验装置原理如图 3-8(a) 所示, 其中探测脉冲的强度固定于 $1.0 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$, 其自身引起的相位调制可忽略。由于泵浦与探测脉冲同色, 实验上采用非共线几何构型以实现两脉冲与介质作用后的空间分离。两脉冲间保持一较小的交叉角, 但该角度并不小至足以分辨光谱中的亚周期特征^[100]。

3.4.1 实验结果

图 3-8(b) 展示了泵浦脉冲强度为 $5.6 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$, 气室温度为 70°C 时的瞬态吸收光谱测量结果。光谱呈现出了两条分别关于共振能量对称的吸收线型, 无明显振荡以及任何能区分正负时间延迟端的光谱特征出现。较强的 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 跃迁导致了在 1.59 eV 附近处更强的吸收信号。在此激光强度下, 更高的气室温度并未引起光谱形貌的明显改变, 吸收谱未呈现随时间延迟变化的动态结构。然而在更高的泵浦脉冲强度下, 吸收谱正负时间延迟端均出现了明显的动力学拍频信

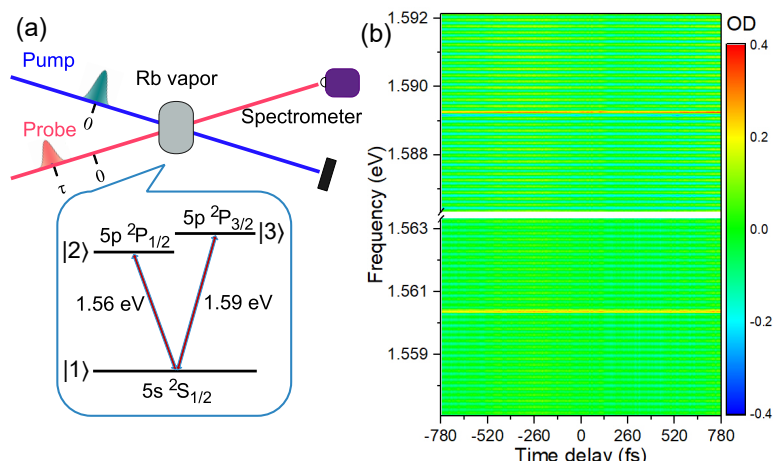


图 3-8 (a) 飞秒瞬态实验装置原理示意图。通过记录不同泵浦脉冲强度、Rb 气室温度以及两脉冲间实验延迟下的探测脉冲透射光谱，以研究介质宏观超快动力学过程。内插图展示了用于模拟脉冲与原子体系相互作用的 V 形三能级系统。激光带宽内包含了往更高的 $5d^2D_{3/2,5/2}$ 能级的跃迁能量，但其在实验测量的光谱范围之外。尽管如此，我们仍将其考虑在了后续的数值计算中，并分别以 $|4\rangle$ 和 $|5\rangle$ 代表 $5d^2D_{3/2}$ 和 $5d^2D_{5/2}$ 。(b) 靶室温度为 70°C 时，弱探测弱泵浦脉冲作用下测得的吸收光谱随时间延迟的变化。

号，如图 3-9(a) 所示。其在共振频率处的振荡周期 $T = 140 \text{ fs} = 2\pi/[(E_{|3\rangle} - E_{|2\rangle})/\hbar]$ (其中 \hbar 为约化 Planck 常数)，证实了 $|2\rangle$ 与 $|3\rangle$ 态在外场下的相干激发与耦合。为了清楚地观察共振光谱特征，图 3-8(b) 和 3-9(a) 中的频率轴被缩放至跃迁频率附近。在此较低的温度下，非共振区域几乎不含系统演化的信息。随后将气室的温度升至 120 和 160°C ，测量到的吸收谱形貌发生了巨大变化，如图 3-9(b) 和 3-9(c) 所示。瞬态吸收光谱在正负时间延迟端所展现的形貌截然不同。与低靶室温度下的测量结果相比，探测-泵浦端的结果变化尤为突出。吸收轮廓被明显展宽，伴随着跃迁能量中心光谱子结构的出现，并在负时间延迟端出现了类似双曲线形貌的结构。随着时间延迟往 0 靠近，吸收线型的展宽愈发明显，光谱结构也愈加复杂。如前所述，更高的气室温度对应着更大的原子密度。吸收光谱动力学演化对原子密度的明显依赖，尤其是频谱中子结构的出现，证明了宏观传播效应已在线形调控中起到不可忽视的作用。

3.4.2 数值结果

与上节类似，我们仍采用密度矩阵形式的理论框架来描述介质与两脉冲激光电场的相互作用。Rb 原子系统由一密度矩阵 $\hat{\rho}(t, \tau)$ 来描述，其对角元为 $|i\rangle$ 态的布居，非对角元 ρ_{ij} ($i \neq j$) 代表 $|i\rangle$ 态与 $|j\rangle$ 态间的相干。系统的动力学演化由如

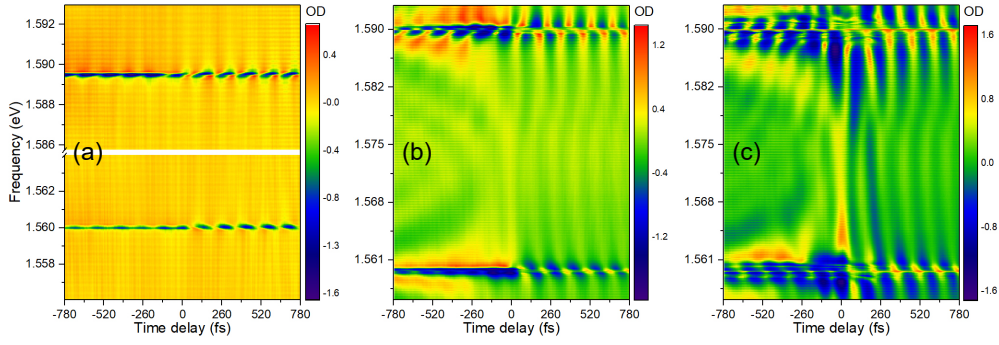


图 3-9 泵浦光强为 $3.3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ，靶室温度分别为 70、120 和 160°C 下实验测得的瞬态吸收光谱。负时间延迟端的物理过程为受扰的极化响应衰减，此时系统的极化响应首先由弱探测脉冲激发，随后被强泵浦脉冲调制。相较于图 3-8(b)，此时在正负时间延迟端均呈现了明显的明显的振荡。

下 Liouville-von Neumann 方程描述

$$i \frac{\partial \hat{\rho}(t, \tau)}{\partial t} = [\hat{H}(t, \tau), \hat{\rho}(t, \tau)] - \frac{1}{2} i \{ \hat{\Gamma}, \hat{\rho}(t, \tau) \}. \quad (3-10)$$

总外场 $E(t, \tau)$ 为泵浦 $E_{\text{pu}}(t)$ 与探测脉冲电场 $E_{\text{pr}}(t, \tau)$ 之和。对角的衰减矩阵 Γ 矩阵元为 $\Gamma_{ij} = \delta_{ij} \gamma_j$ ，其中 $\gamma_1 = 0$ 。通过拟合 70°C 下的线型宽度，可得 $|2\rangle$ 与 $|3\rangle$ 态的衰减时间在皮秒量级。考虑到实际的计算量，这里取 $\gamma_2 = \gamma_3 = 1/1000 \text{ fs}^{-1}$ ，以期定性重现实验结果。尽管本研究关注的核心为图 3-8 (a) 所示的 V 形三能级跃迁，且仅包含这些能级的计算已足以定性描述大部分的实验线型，在实际计算中仍考虑了往更高的 $5d^2D_{3/2,5/2}$ 能级的激发。 $|4\rangle$ 与 $|5\rangle$ 态的能量以及相应的偶极矩阵元分别取自文献 [101] 和 [102]，并在计算取 $\gamma_4 = \gamma_5 = 1/1000 \text{ fs}^{-1}$ 。输入脉冲参数（中心波长 795 nm，脉宽 30 fs， \cos^2 电场包络，探测脉冲强度 $1.0 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ ）与真实实验条件类似。系统的极化响应 $P(t, \tau)$ 与单原子偶极矩 $d(t, \tau)$ 的关系为

$$P(t, \tau) = Nd(t, \tau) = N \text{Tr}[\hat{\rho}(t, \tau) \mathbf{M}], \quad (3-11)$$

其中 N 为原子数密度，其在温度恒定的 Rb 气室内被视作常数。在稀薄气体极限下，光密度与系统单原子响应通过下式联系^[89]

$$\text{OD}_1(\omega, \tau) \propto -\omega \text{Im}[\tilde{E}_{\text{pr}}^*(\omega, \tau) \tilde{P}(\omega, \tau)], \quad (3-12)$$

其中 $\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, \tau)$ 为探测脉冲的傅里叶变换。当两脉冲同时存在时，密度矩阵依赖于两脉冲间的实验延迟，使得系统极化响应以及吸收线型随 τ 变化。忽略两脉冲时间重合区域，探测脉冲 $\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, x, \tau)$ 延 x 方向上的单向演化可由下式近似^[78]

$$\frac{\partial}{\partial x} \tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, x, \tau) = -2\pi i \frac{\omega}{c} \tilde{P}(\omega, x, \tau). \quad (3-13)$$

该方程表明在传播过程中极化响应将激发产生新的电场。与原电场一起，新产生的电场将与后续的原子相互作用，反过来激发二次极化响应。该过程一致重复，直至脉冲离开介质。与上节数值方法类似，在每一空间位置，首先数值求解 Liouville 方程 (3-10)，并通过式 (3-11) 计算极化响应。随后，将极化响应傅里叶变换至时域并带入波动方程 (3-13)，以向前传播。该数值方法计算的探测脉冲光谱依赖于空间位置以及时间延迟，在介质中穿透深度为 x 时的光密度可由下式得出

$$\text{OD}_1(\omega, x, \tau) = \ln [|\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, 0, \tau)|^2 / |\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, x, \tau)|^2]. \quad (3-14)$$

至此，对该物理过程的理论描述与已报道的双色共线瞬态吸收研究类似。对于实际采用的非共线的几何构型，其对光谱的平均效应使得测得的吸收谱中无法分辨随时间延迟的快速振荡。上述方法计算的光密度 OD_1 需要与归一化的宽度为 $\Delta\tau = 5 \times 2\pi/\omega_L$ 的高斯函数 $G(\tau, \Delta\tau)$ 卷积，以纳入此效应的贡献^[103, 104]

$$\text{OD}(\omega, x, \tau) = \int_{-\infty}^{\infty} G(\tau - \tau', \Delta\tau) \text{OD}_1(\omega, x, \tau') d\tau', \quad (3-15)$$

其中 ω_L 为激光振荡频率。

为了阐明瞬态吸收光谱的强度依赖，我们首先计算了气室温度为 70°C ，泵浦强度为 5.6×10^8 以及 $3.3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 时的瞬态吸收光谱，分别如图 3-10(a) 和 3-10(b) 所示。从中可以很明显地看出，图 3-10(a) 中的光谱几乎为静态的，不随时间延迟改变，而图 3-10(b) 展示了多样的动力学行为。该现象与上述实验结果一致，并表明了通过调节脉冲强度以操纵系统的动力学演化的可能性。在最近的一项 V 形三能级与强激光脉冲相互作用的理论研究中，Becquet 和 Cavaletto 从相互作用算符矩阵元素出发，解释了时间延迟平均后的吸收光谱动力学过程^[104] [参见原文献中式 (34) 及 (42)]。探测-泵浦端的振荡来源于 V 形三能级中基态与两激发态间的相干，并与探测光作用后的初始值 ρ_{12} 、 ρ_{13} ，以及其在与泵浦脉冲作用后的相互转化有关。两激发态间的相干 ρ_{23} 、 ρ_{32} 对频率为 ω_{32} 的振荡无关。而对泵浦-探测端，光谱振荡与先到的泵浦脉冲作用后的相干 ρ_{23} 、 ρ_{32} ，以及它们如何在探测光的作用下转化为 ρ_{12} 、 ρ_{13} 联系。这是泵浦脉冲诱导的两跃迁的耦合，并在后续探测脉冲的作用下呈现出的结果。在此，我们明确地揭示相干在瞬态吸收光谱中的作用。相对于图 3-10(b)，我们在计算中人为地设置 $\rho_{23} = \rho_{32} = 0$ ，计算结果如图 3-10(e) 所示。显而易见的是，正时间延迟端光谱随延迟的振荡消失了，而负时间延迟端的光谱形貌几乎不变。为了消除探测-泵浦端的振荡，可以选择性地将 ρ_{12} 或 ρ_{13} 设置为 0。但随之而来的是，相应 $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ 或是 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 的跃迁光谱形貌也将消失，而在正时间延迟下另一跃迁能量处的振荡仍会保留。这与图 3-10(f) 中展示的计算结果一致，在其计算中 ρ_{12} 始终保持为 0。在不同的脉

冲作用次序下, $|2\rangle$ 与 $|3\rangle$ 态间 0.03 eV 的精细能级分裂间隔决定了共振能量处约 140 fs 的振荡周期。通过保持与图 3-10(b) 中脉冲强度一致, 我们计算了更高的气室温度为 120 和 160 °C 情形, 计算结果分别如图 3-10(c) 和 3-10(d) 所示。需要再次指出的是, 在计算中对所有激发态均使用了较短的衰减时间, 计算结果仅代表定性比较。对于泵浦-探测端, 共振能量附加的双曲线结构伴随着上述光谱振荡的出现, 与近年来涉及受扰的偶极衰减 (Perturbed polarization decay or Perturbed free induction decay) 研究中现象类似^[103--105]。这归因于时域的极化响应自然衰减部分与受调制部分的光谱干涉^[105]。总的来说, 计算结果中的光谱特征所展示的密度依赖与图 3-9(a)-(c) 的测量结果类似。对于更高的气室温度, 除了吸收线形的展宽外, 光谱中的子结构逐渐形成并变得愈加突出。在原子密度较低时, 受测量结果较低的信噪比影响, 图 3-9(a) 中无明显的双曲线形结构。由于光密度 OD 的数值依赖于计算使用的衰减时间, 计算结果不可避免地与实验结果间呈现出一定的偏差。图 3-10(g) 中展示了靶室温度为 160 °C 下初始以及经过介质后的探测脉冲电场。泵浦脉冲的存在使得系统的极化响应被调制, 表现为 $t = 0$ 附近电场演化的改变。由于诱导的极化响应与激发光场间的相互作用, 探测脉冲的时域结构被拉长, 并在尾部形成一系列的子脉冲, 引起了新的光谱结构, 改变了介质的发射及吸收特性。

3.4.3 解析模型

A. N. Pfeiffer 等人在 2013 年提出了一种在频域模拟探测-泵浦端受扰的偶极衰减的解析方法。但在原文献 [92] 中, 由于实际的动力学过程与本节不同, 光谱中没有随时间延迟的拍频信号出现。而在单原子层面, 偶极子控制模型 (dipole-control model) 已成功应用于激光诱导线形变化中的幅度和相位信息提取^[84, 105, 106]。本小节将结合这两种方法, 描述测量到的实验结果, 并提供了一种简单且有效地理解激光耦合以及传播效应的方法。其出发点为文献 [92] 中稀薄介质内系统极化响应的表达式

$$\tilde{P}(\omega, 0, \tau) = \chi(\omega)\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, 0, \tau) \left\{ 1 + [L(\tau) - 1]e^{i(\omega - \omega_0) + \gamma/2] \tau} \right\}. \quad (3-16)$$

其中 ω_0 和 γ 分别代表了共振频率和衰减率。 $\tilde{E}_{\text{pr}}(\omega, 0, \tau)$ 为入射的探测脉冲的频域电场, 在之后的模拟中采用与实验值相同的参数。两跃迁独立考虑, 其中单一跃迁的极化率 $\chi(\omega)$ 表达式为

$$\chi(\omega) = \frac{2N\omega_0\mu^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (3-17)$$

泵浦脉冲对系统极化响应的调制通过一复参量 $L(\tau)$ 来表示。由于脉冲持续时间比所考虑跃迁激发态的寿命短得多, 该调制在时域上可视为无穷短。根据偶极子

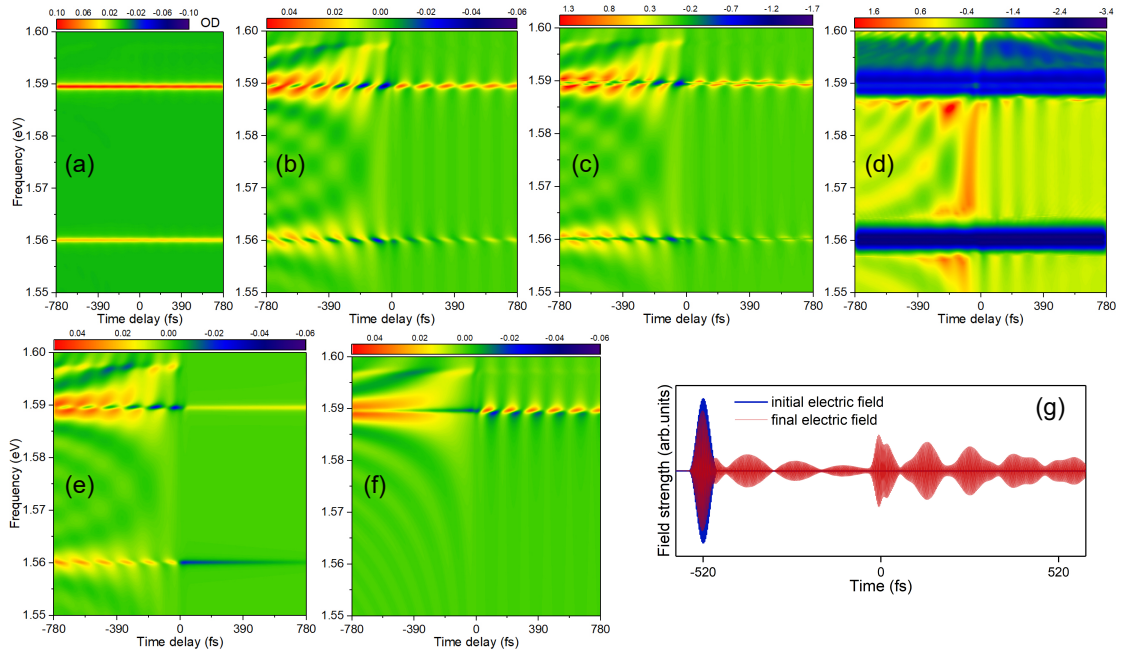


图 3-10 基于五能级的密度矩阵数值计算结果。(a) 在泵浦强度为 $5.6 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ ，靶室温度为 70°C 时理论计算的瞬态吸收光谱。(b)–(d) 泵浦强度为 $3.3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ，气室温度分别为 70 、 120 和 160°C 度下的计算结果。在图 (e) 和 (f) 中，我们分别设置相干项 $\rho_{23} = \rho_{32} = 0$ 和 $\rho_{12} = 0$ ，其余计算条件均与图 (b) 保持一致。由于 $|3\rangle \rightarrow |4\rangle$ 以及 $|3\rangle \rightarrow |5\rangle$ 跃迁能量在 1.597 eV 附近，图中包含了其部分共振吸收形貌。图 (a)、(b)、(e) 和 (f) 中的结果与基于式 (3-10)–(3-12) 的计算结果十分类似，可因此被视为系统的单原子响应。(g) 时间延迟 $\tau = -520 \text{ fs}$ 时，图 (d) 中入射和出射的探测光电场时域形式。

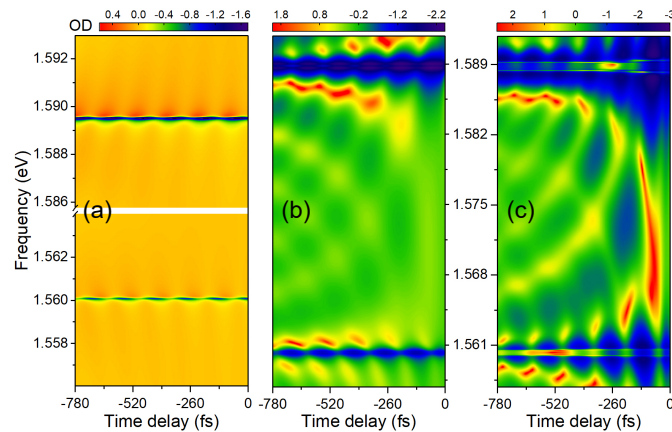


图 3-11 解析近似下负时间延迟端模拟所得的瞬态吸收光谱。稀薄气体极限下 [(a) 70°C] 的光密度通过拟合相应实验结果以及式 (3-16) 和 (3-12) 获得。更高靶室温度下的计算结果 [(b) 120°C 、(c) 160°C] 重现了吸收谱中的双曲结构，随时间延迟的振荡，以及光谱子结构的出现。

控制模型^[84,105,106]，此情形下态内和态间的过程均对线形的调制有贡献，对任一跃迁， $L(\tau)$ 可表示为

$$L_k(\tau) = a_{1k}e^{i\phi_{1k}} + a_{2k}e^{i\Delta\omega_k(-\tau)+i\phi_{2k}}, k = 2, 3. \quad (3-18)$$

其中， $\Delta\omega_3 = \omega_{31} - \omega_{21}$ ， $\Delta\omega_2 = -\Delta\omega_3$ 。 $L(\tau)$ 中的这些幅度和相位参数量化了在与泵浦脉冲相互作用前后，基态与激发态间的相干项 ρ_{1k} 的变化。当无泵浦脉冲作用或泵浦脉冲强度较低时， $L = 1$ ，吸收谱中呈现自然的 Lorentzian 线型。对于其它情形， L 依赖于两脉冲间实验延迟，频谱中出现振荡信号。 $L(\tau)$ 中的这些参数可通过以上表达式以及式 (3-12)，独立地二维拟合两跃迁稀薄气体极限下的瞬态吸收光谱得到。

考虑到脉冲传播引入的集体相互作用，介质在频域的极化响应表达式为

$$\tilde{P}(\omega, x, \tau) = \chi(\omega)\tilde{E}_{pr}(\omega, x, \tau) + i\chi(\omega)\frac{[L(\tau) - 1]Q(x, \tau)}{\sqrt{8\pi N\mu^2}}. \quad (3-19)$$

其中 $Q(x, \tau)$ 描述了 $t = 0$ 时刻的极化响应，其定义为

$$Q(x, \tau) = \frac{2}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \chi(\omega)\tilde{E}_{pr}(\omega, 0, \tau)e^{-2\pi i\frac{\omega}{c}\chi(\omega)x}d\omega. \quad (3-20)$$

极化响应在频域的解析表达式 (3-19) 绕开了时域积分的需要。提取到极化响应调制 $L(\tau)$ 后，仅需开展一空间积分以考虑脉冲传播。对于高原子密度情形，光吸收可通过次序地求解式 (3-19) 及式 (3-13)，并将透射光谱带入式 (3-14) 求得。图 3-11 展示了相应三个靶气室温度下的模拟结果，其中每一跃迁的光吸收首先独立计算，随后叠加在一起。与数值计算结果相对比，图 3-11 与实验结果实现了更好的符合，这来源于解析计算中可方便地采用与实际相符的激发态衰减率。

3.5 小结

本章基于同色非共线泵浦-探测装置，开展了铷原子蒸气的飞秒静态及瞬态吸收光谱测量，通过光谱线型的变化研究了系统在外场下的动力学演化。在静态吸收光谱中，揭示了单束强激光场的自调制效应所引起的吸收形貌由自然、对称的 Lorentzian 线形变为非对称的 Fano 线形，而脉冲传播导致了谱线展宽及吸收峰子结构的出现。在瞬态吸收光谱研究中，揭示了系统的相干在线形调控中的作用，并结合理论模拟再现了吸收谱对脉冲强度和原子密度的依赖。

然而，由于实验条件的限制，本章工作中仅开展了不同激光强度下铷原子吸收线形的测量。然而，激光脉冲的其它关键参数，如中心波长（载波频率）、脉宽、啁啾等均会影响线形调制过程。在下一章中，在单原子响应近似下，我们还将从理论上研究系统吸收线形对其余激光脉冲参数的依赖，并结合解析模型解释其物理来源。

第四章 单束极紫外脉冲对原子激发的直接操纵

4.1 引言

基于超短激光脉冲开展的时间分辨吸收光谱学已成为探测并控制电子动力学过程的主要方式。飞秒激光脉冲驱动产生的高次谐波作为一种台式的阿秒极紫外光源，为超快科学的研究提供了前所未有的时间分辨。在众多的实验研究中，激光诱导的光谱变化已成为其中一主要分支。在通过瞬态吸收研究介质共振吸收线形变化的工作中，当耦合脉冲的强度无法实现原子有效电离时，线形的改变通常归因于相应能级在外场下的相位变化 $\Delta\phi_j = \int dt \Delta E_j$ 。能级 j 态的瞬态能级偏移 ΔE_j 导致了其态系数的相位偏移，影响了电偶极矩的时域振荡形式，从而改变了新产生的电场与原驱动电场间的干涉结果。吸收谱中共振线型相应发生变化，其蕴含了系统的偶极响应在时域的振荡信息。模拟能级偏移为该图像下的核心要点，目前常用的理论模型有：1) 基于自由电子在外场下运动的有质动力势偏移，适用于高激发的 Rydberg 能级^[60]，对光谱线形的调控还被证实可反过来用于激光脉冲强度和持续时间的原位表征^[107]；2) 基于二阶微扰论的 ac Stark 位移，适用于耦合光场载波频率与共振能量偏移较大情形；3) 绝热 Floquet 图像下，采用旋波近似 (rotating-wave approximation) 计算的缀饰明态 (bright state) 与原能级能量间的偏移，适用于耦合光场近共振情形^[108]。

迄今为止，绝大多数阿秒瞬态吸收实验都基于实验室台面的高次谐波源开展。该方案产生的 XUV 脉冲强度相对较弱，使得微扰处理其与介质的相互作用切实可行。然而，之前报导的研究工作^[109] 和我们的实验结果^[110] 均表明，在近红外区域可以采用单束强激光脉冲调制共振跃迁光谱形貌。一些前瞻性的理论工作还开展了通过短波段的强激光脉冲操纵自电离态动力学过程^[111-113]，这一方案在最近由 C. Ott 等人通过自由电子激光在实验上得以证明^[75]。然而，外场调制下吸收线型改变的物理机制^[75,79] 并不是多电子共振所独有的，而是普遍适用于任何跃迁。本章工作关注于基础的宽带激光脉冲与两能级系统的共振相互作用，其代表了众多复杂物理过程的简化。值得注意的是，本工作中所使用的激光电场强度足以引起两能级间明显的布居转移，这使得超越微扰近似的理论处理是必要的。除此之外，我们还将在后文中分析上述的有质动力势偏移和绝热旋波近似模型在此情形下的不适用性。该工作是目前阿秒瞬态吸收光谱研究的有效补充，为在短波段控制电子超快动力学过程提供了一种不同的方式。

4.2 理论方法

本工作的关注点为外激光场对原子能级的扰动，及其造成的系统相应的吸收线形变化。由此，采用基于波函数的理论描述相较于密度矩阵形式更加适合描述该物理过程。

4.2.1 数值方法

系统的波函数可写作无场下两能级态矢的相干叠加 $|\Psi(t)\rangle = c_1(t)e^{-i\omega_1 t}|1\rangle + c_2(t)e^{-i\omega_2 t - \Gamma t/2}|2\rangle$ ，含时态系数 $c_1(t)$ 和 $c_2(t)$ 蕴含了外场对系统的扰动信息，其在时域的演化可通过数值求解 Schrödinger 方程获得

$$i\dot{c}_1(t) = -\mu E(t)e^{-i\omega_r t - \frac{\Gamma}{2}t}c_2(t), \quad (4-1a)$$

$$i\dot{c}_2(t) = -\mu E(t)e^{i\omega_r t + \frac{\Gamma}{2}t}c_1(t). \quad (4-1b)$$

其中， μ 为跃迁偶极矩阵元， $\omega_r = \omega_2 - \omega_1$ 为跃迁频率。电场的表达式为 $E(t) = F(t)e^{i\omega_0 t} + \text{c.c.}$ ，其中 $F(t)$ 为包络函数， ω_0 为载波频率。上述微分方程可通过采用旋波近似进一步简化，但为了得到更准确的结果以用于后续分析，计算中仍保留高频振荡成分。单原子的极化响应可表示为

$$d(t) = \mu c_1(t)c_2^*(t)e^{i\omega_r t - \Gamma t/2} + \text{c.c.} \quad (4-2)$$

对光吸收过程完整的理论描述需要求解 Maxwell 波动方程以纳入脉冲在介质中传播所引入的传播效应。然而，当靶样品较为稀薄时，完整的描述下计算结果与单原子近似下类似，只线性地依赖于靶密度^[114]。刻意地抑制传播效应的贡献还有助于从吸收谱中直接提取系统的微观响应，吸收谱可通过下式计算^[89]

$$A(\omega) \propto -\omega \text{Im}[\tilde{d}(\omega)/\tilde{E}(\omega)], \quad (4-3)$$

其中 $\tilde{d}(\omega)$ 和 $\tilde{E}(\omega)$ 分别为时域偶极响应和电场正频的傅里叶变换。

共振吸收线形的不对称性可通过拟合 Fano 线形量化

$$A(\varepsilon) = a \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} + b, \quad (4-4)$$

其中， q 为 Fano 不对称参数， $\varepsilon(\omega) = 2(\omega - \omega_r)/\Gamma$ 为约化能量。 a 和 b 分别为幅度以及偏移量的拟合参数，其在我们后续的讨论中是无足轻重的。偶极相位偏移与非对称参数参数间通过 $\phi_d = 2 \arg(q - i)$ 或 $q = -\cot(\phi_d/2)$ 联系^[60]。

偶极响应在时域上包含了两部分：驱动脉冲包络内的响应函数及脉冲结束后的自由衰减。当跃迁的衰减时间相较于脉冲持续时间长得多时，第二部分的贡献占据主导地位，在与脉冲相互作用过程中累积的相位偏移可视为系统极化响应的全局相位偏移。

4.2.2 共振情形下的普适解

当激发脉冲的中心频率与二能级跃迁频率完全吻合时，微分方程组 (4-1) 可以借助旋波近似简化。由于激光脉冲的持续时间比激发态的衰减时间短得多，忽略掉方程中反向旋转项和衰减项后，可以得到以下简单形式：

$$i\dot{c}_1(t) = -\frac{1}{2}\Omega(t)c_2(t), \quad (4-5a)$$

$$i\dot{c}_2(t) = -\frac{1}{2}\Omega(t)c_1(t). \quad (4-5b)$$

其中，认为 Rabi 频率 $\Omega(t) = 2\mu F(t)$ 始终为实。初始条件为 $c_1(0) = 1, c_2(0) = 0$ 时，式 (4-5) 在 $t \geq 0$ 下的表达式为

$$c_1(t) = \cos\left[\frac{\theta(t)}{2}\right], \quad (4-6a)$$

$$c_2(t) = i \sin\left[\frac{\theta(t)}{2}\right], \quad (4-6b)$$

式中无量纲参数 $\theta(t) = \int_{-\infty}^t \Omega(t') dt'$ 代表 XUV 脉冲含时的脉冲面积。上式表明态系数的演化不依赖于脉冲的具体形状，而只取决于其积分。此外， c_1 为实数而 c_2 为虚数，当其依赖的三角函数正负改变时，它们的相位将呈现出 π 的阶跃，而在其它情形下相位均保持恒定。

4.2.3 近共振情形下的解析解

当失谐 $\Delta = \omega_0 - \omega_r$ 非零时，微分方程组没有普适的解析解，只在特定情形下存在解析表达式。一个经典的教科书上的示例是二能级系统与近共振单色脉冲的相互作用。基于该示例，我们将展示矩形脉冲驱动下的解析表达式能很好地再现出上述高斯脉冲作用下的数值结果，并给出波包演化过程中相位变化的物理机制。当初始布居全位于基态，在零时刻施加一宽度为 T 的矩形脉冲，系统态系数在 $0-T$ 时间内的演化可表示为

$$c_1(t) = e^{i\Delta t/2} \left(\cos\frac{\tilde{\Omega}t}{2} - \frac{i\Delta}{\tilde{\Omega}} \sin\frac{\tilde{\Omega}t}{2} \right), \quad (4-7a)$$

$$c_2(t) = i \frac{\Omega}{\tilde{\Omega}} e^{-i\Delta t/2} \sin\frac{\tilde{\Omega}t}{2}. \quad (4-7b)$$

这时，上下能级间的布居以广义的 Rabi 频率 $\tilde{\Omega} = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$ 振荡。用缀饰能量来描述，上式还可写为

$$c_1(t) = \frac{\tilde{\Omega} - \Delta}{2\tilde{\Omega}} e^{i(\tilde{\Omega} + \Delta)t/2} + \frac{\tilde{\Omega} + \Delta}{2\tilde{\Omega}} e^{-i(\tilde{\Omega} - \Delta)t/2}, \quad (4-8a)$$

$$c_2(t) = \frac{\Omega}{2\tilde{\Omega}} e^{i(\tilde{\Omega} - \Delta)t/2} - \frac{\Omega}{2\tilde{\Omega}} e^{-i(\tilde{\Omega} + \Delta)t/2}. \quad (4-8b)$$

该表达式在共振情形 ($\Delta = 0$) 时与式 (4-6) 在 Rabi 频率不变时等价。从上式可以看出, 当驱动脉冲存在时无场能量附加会出现两个边带频率。基态包含频率 $(-\Delta \pm \tilde{\Omega})/2$, 而激发态包含两强度相等的频率 $(\omega_0 \pm \tilde{\Omega})/2$ 成分。当使用一束弱脉冲从第三个能级探测该跃迁时, 将会测到能级的分裂, 该现象被称作 Autler-Townes 效应^[115]。当该系统受到持续的脉冲驱动时, 荧光光谱中将呈现 Mollow 三重态^[116]。脉冲结束时态系数间的相位差可以表示为

$$\begin{aligned} \Delta\phi &= \arg[c_2(T)c_1^*(T)] \\ &= \arg\left\{e^{-i\Delta T}\left[i\sin\tilde{\Omega}T - \frac{\Delta}{\tilde{\Omega}}(1 - \cos\tilde{\Omega}T)\right]\right\}. \end{aligned} \quad (4-9)$$

通过减去其在弱场极限 ($\tilde{\Omega} \rightarrow \Delta$) 下的数值, 可以得到在与外场相互作用过程中引入的相位偏移, 这是频域中吸收线形变化的由来。

4.3 线形变化的分析

作为示例, 我们在计算中考虑 He 原子 $1s^2$ 到 $1s2p$ 的跃迁, 其光谱信号在相关的阿秒瞬态吸收工作中已被广泛研究^[91,108,114,117--121]。此外, 作为 He 原子最低的激发能级, $2p$ 电子还远不及视作自由电子, 不能用有质动力势来模拟其在外场下的能级偏移。基态和激发态的能量分别取 0 和 21.2 eV, 偶极矩阵元 $\mu = 0.4$, 衰减时间 $1/\Gamma = 120$ fs。在后续数值计算中, 除特别说明外, 均使用 $\tau = 5$ fs 半高全宽的高斯脉冲。为了引起上下两能级间明显的 Rabi 振荡, 同时脉冲强度不至于太高而导致上能级电离, 从而破坏二能级近似的有效性, 我们选用的脉冲面积 θ 为 $0-1.5\pi$, 对应于最高峰值功率为 35×10^{12} W/cm²。

4.4 脉冲参数的影响

图 4-1(a) 和 4-1(b) 展示了系统在中心频率为 21.0 eV 的 XUV 脉冲驱动下, 两典型的激光强度下的吸收线形。由于图 4-1(a) 中脉冲相对较弱, 吸收线形仍保持为自然的 Lorentzian 线形, 通过拟合得出的偶极相位偏移几乎为 0。而在图 4-1(b) 中, 强场作用下吸收线形出现了明显的变化, 表现为非对称的 Fano 线形。对后一种情形, 图 4-1(c) 展示了其态系数的相位随时间的演化 $\phi_i(t) = \arg[c_i(t)]$ 。在计算中减去了弱场情形下的相位偏移量, 所得结果从而可以代表外场直接引起的能级间相位变化。通过拟合线形得到的偶极相位偏移 ϕ_d 与系统与脉冲作用后能级间相位差 $\phi_2 - \phi_1$ 很好符合, 证明了吸收谱线的变化来源于外场对能级的缀饰。由于实际的脉冲存在有限的持续时间, 计算的能级相位偏移相应地存在一段上升期, 其带来的影响无法从单一的线形的非对称参数 q 或相应的偶极相位偏移 ϕ_d

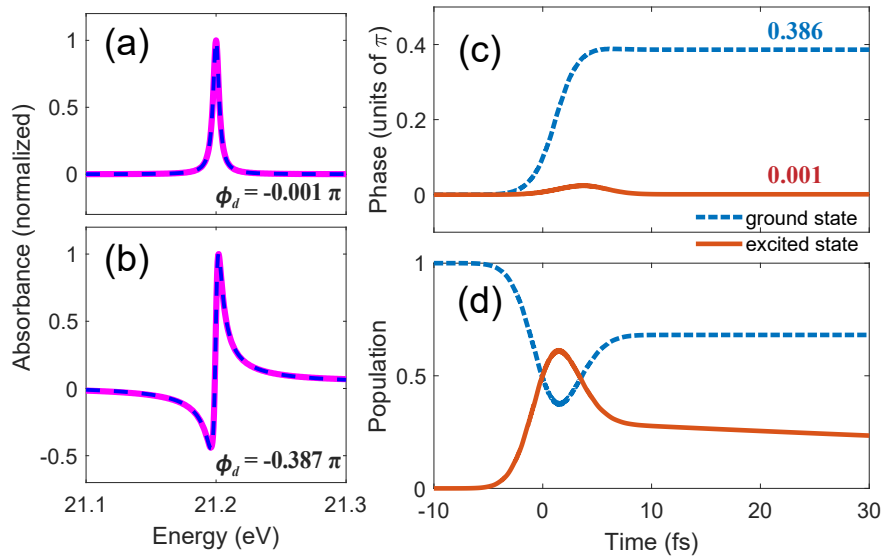


图 4-1 归一化的吸收线形。数值计算中（洋红实线），高斯脉冲中心频率为 21.0 eV ($\Delta = -0.2$ eV)，峰值强度分别为 (a) 0.1×10^{12} W/cm²，(b) 35×10^{12} W/cm²。通过数据拟合（蓝色虚线）能得出其线形不对称参数及相应的偶极相位偏移。在图 (b) 情形下，基态和激发态 (c) 相位偏移和 (d) 布居随时间的演化。

中提取得出。值得一提的是，如图 4-1(d) 所示，吸收线形的明显改变还伴随着能级间布居的显著转移。这一现象表明了弱场激发近似的局限性，基于微扰论发展的解析模型在此情形下不适用。

4.4.1 激光强度及中心频率

建立了光谱线形变化与量子态相位偏移间的关联后，我们将通过改变 XUV 脉冲的关键参数，研究该过程在更普适的情形下的结果。图 4-2 展示了在失谐为 $-0.3 - 0.3$ eV 内，偶极相位偏移 ϕ_d 随脉冲强度的变化。对于共振的激光脉冲，随着脉冲强度的增加，偶极相位偏移先恒定为 0，紧接着在一临界强度下阶跃到 $-\pi$ ，对应于光谱由 Lorentzian 吸收线形变为 Lorentzian 发射线形。在文献 [79] 中，由于其应用的激光强度较低，该相位阶跃并未出现。随着强度的进一步提高，该相位一直保持在 $-\pi$ 。相较之下，该相位偏移在近共振情形下随激光强度的提升单调变化。在相同失谐量下，正负失谐对应于符号相反，但偏移量几近相同的偶极相位（正失谐对应相位偏移为正，负失谐对应相位偏移为负）。更大的失谐量总体上对应于更小的相位偏移。

图 4-3 展示了在四个代表性的脉冲强度下，提取的偶极相位偏移随失谐的变化。与预想一致，当脉冲强度相对较低时，吸收线形没有明显改变，偶极相位偏移在整个失谐区间均为 0。在较强的脉冲作用下，该相位偏移随失谐平滑变化，

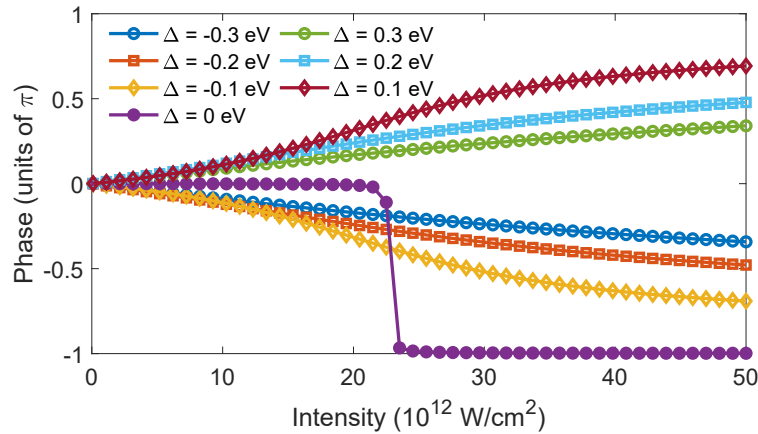


图 4-2 不同失谐下，通过拟合数值计算中吸收谱线所得到的偶极相位偏移随激光强度的变化。

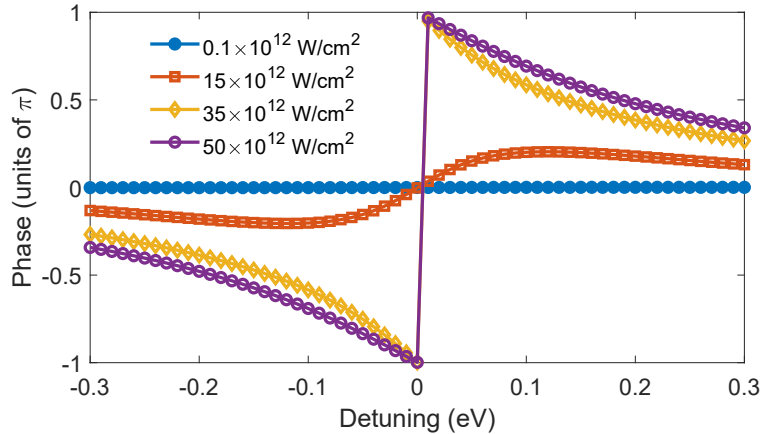


图 4-3 不同激光强度下，通过拟合数值计算中吸收谱线所得到的偶极相位偏移随失谐的变化。

对应吸收线形存在一定程度的改变。在更高的强度下，其演化曲线类似于反比例函数。对从负到 0 的失谐，该相位逐渐减小到 $-\pi$ ，并在失谐从 0 往正方向增加时逐渐从 π 减小。

以上数值结果可通过上述给出的解析表达式很好解释。在驱动激光脉冲作用下，上下两能级均转变为两个坠饰态 (dressed state)。在典型的 XUV-NIR 瞬态吸收研究中，NIR 脉冲强烈地耦合二能级系统，动力学响应由 XUV 光探测。式 (4-8a) 中幅度较大的部分对应于 Stark 偏移的明态，而幅度较小的部分导致了光致能级 (light-induced state) 的产生。借助绝热的旋波近似模型，通过缀饰能级与原能级间能量偏移所算出的相位偏移已成功用于解释瞬态吸收谱中明态的线形变化^[108]。尽管如此，由于能级瞬态偏移的特征时间远短于其衰减时间，傅里叶

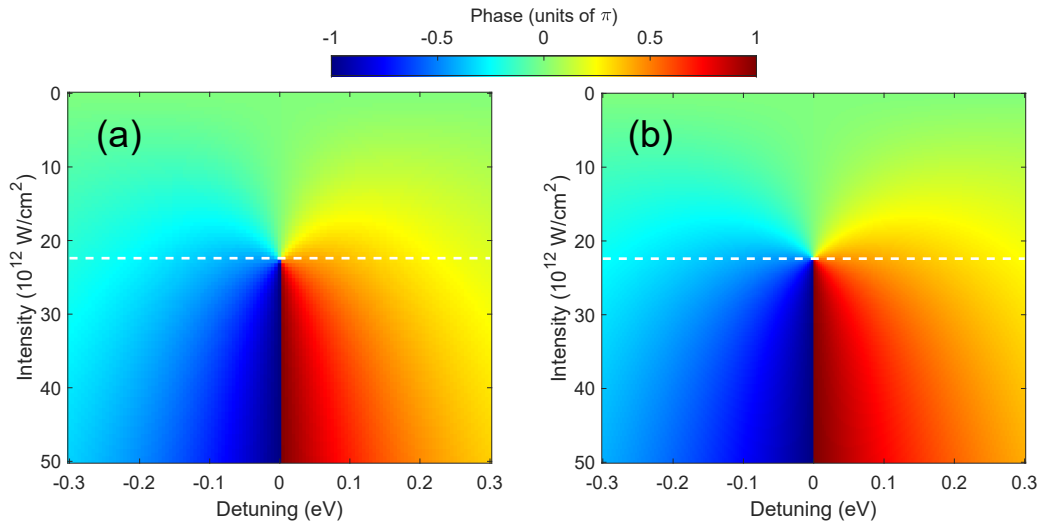


图 4-4 从数值计算的吸收谱中提取的偶极相位偏移 (a)，以及相应的解析计算结果 (b)。白色虚线标记了脉冲面积为 π 时的激光强度。

变换后光谱中不会出现线形的能量移动和分裂，将该方法直接应用于此情形是不可行的。之前的研究工作也不同程度地表明，在超短激光脉冲直接驱动下，广义 Rabi 频率不适用与预测系统的能级偏移^[75,79]。通过式 (4-8) 的结构，该结论可解释如下：等式 (4-8) 右端中任意一项都不能完全代表其能级态系数的相位变化，由于总贡献所引起的系统偶极相位偏移应通过式 (4-9) 得出。在共振条件下，式 (4-6) 直观地解释了系统态系数的相位演化。随着脉冲强度的增加，当脉冲面积达到 π 时，基态态系数的相位出现幅度为 π 的阶跃（即其正负变号），并在其它情况保持不变。相比之下，激发态态系数的相位在整个 $0-1.5\pi$ 的脉冲面积下均保持不变。式 (4-6) 还表明了态系数从 0 到 π 的相位变化在时域上是瞬时发生的，这也已被我们额外的在包含旋波近似的计算中得以验证（结果未显示）。这一现象表明在完成了半个 Rabi 振荡后返回基态的电子携带了额外的 π 相位，而瞬态能级偏移的图像在此不适用。无旋波近似下的结果中呈现出了一段较短的相位上升时间，表明该偏差实际来源于原微分方程 (4-1) 中忽略的反向旋转项。图 4-4 中展示了从数值计算的吸收谱中提取所得的偶极相位偏移以及通过解析模型中算出的结果。在解析计算中，在保持相同的脉冲面积下，这里取矩形脉冲的电场强度与数值计算中高斯脉冲的峰值电场强度一致，即矩形脉冲宽度 $T = \tau\sqrt{\pi/(2\ln 2)}$ 。图 4-4 中的相位偏移在共振位置两端近似对称，并整体呈出心形（或喷泉形）。由于解析计算的结果与数值解中提取的结果十分吻合，该解析模型可用于定量描述外场诱导的相位偏移以及吸收线形随驱动脉冲强度与中心频率的变化。

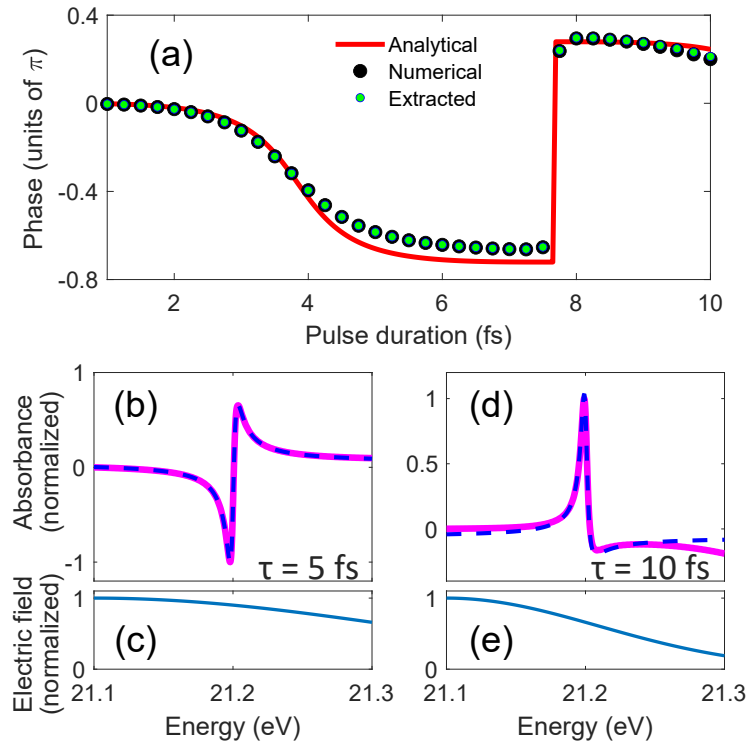


图 4-5 偶极相位偏移随脉冲持续时间的变化。计算中所用的脉冲强度以及中心频率分别为 $35 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 和 21.1 eV 。(b) 5 fs 和 (d) 10 fs 脉冲宽度下，数值求解的吸收线形（洋红实线）以及其相应的拟合结果（蓝色虚线）。图 (c) (d) 为其相应的脉冲宽度下频域电场幅度。

4.4.2 激光持续时间

如前所述，以上结果均为脉冲持续时间相对较短的情形。除了强度和中心频率之外，脉冲持续时间是驱动激光另一个值得仔细考虑的重要参数。在该节中，我们将证明上述解析模型在不同驱动脉冲持续时间下的普适性。在图 4-5(a) 中，我们对比了数值解、解析解以及从数值计算得到的吸收线形中提取的偶极相位偏移随高斯脉冲持续时间的变化。由于时域较长的脉冲对应于频域较窄的光谱，在计算中脉冲时间最长取到 10 fs。在固定的脉冲强度下，较长的持续时间对应于更大的脉冲面积。偶极相位偏移的大小最初随脉冲持续时间的增加而增加，与图 4-2 中随脉冲强度变化的演化规律类似，而脉冲持续时间进一步的增加导致了 π 相位阶跃的出现。从式 (4-7b) 中可以看出，激发态系数 $c_2(t)$ 的相位在广义的脉冲面积 $\tilde{\Omega}t$ 达到临界值 2π 时将出现大小为 π 的阶跃，对应于矩形和高斯脉冲的持续时间分别为 $T = 11.55 \text{ fs}$ 和 $\tau = 7.67 \text{ fs}$ ，与图中展示的计算结果完美符合。数值解与解析解在整个脉冲持续时间范围内的一致符合再一次证明了解析模型的有效性，揭示了强激光脉冲在与二能级体系相互作用中对能级演化的影响以及

作用之后系统吸收光谱的形式。值得注意的是，当驱动脉冲较长以致于其频谱在共振能量附近变化较大时，由式 (4-3) 计算出的线形与标准 Fano 线形相比在两翼存在一定偏差，这将使得从吸收谱中提取的相位偏移与实际存在一定差异。

4.4.3 激光啁啾

以上讨论分析仅限于傅里叶变换极限脉冲驱动下的动力学过程，而激光脉冲无论是由于非线性产生过程中的内在啁啾，亦或是在光路中传播引入的附加相位，在实际的实验中都很难消除抑或完全补偿，且会直接影响激光与物质的相互作用结果。在该小节中，我们将简要讨论线性啁啾的激光脉冲驱动下的情形，即

$$E(t) = F(t)e^{i\omega_0 t + ict^2/2} + \text{c.c.} \quad (4-10)$$

此时，激光的瞬时频率可表示为 $\omega = \omega_0 + ct$ ，其中 c 为啁啾率。在此仅讨论激光脉冲中心频率 ω_0 与跃迁频率 ω_r 相同情形，即正负失谐成分幅度相同、对称地分布在脉冲两端。图 4-6 中展示了脉冲宽度为 5 fs 时，从数值计算的吸收线形中提取的偶极相位偏移在不同的啁啾率下随脉冲强度的变化。回顾以上得出的关于相同失谐量的正负失谐脉冲诱导的偶极相位偏移的结论，并将此处的啁啾脉冲视为时域上一系列振荡频率不同的“无啁啾”子脉冲，对该现象可以如下理解：当驱动脉冲较弱以致于基态布居的损耗可忽略时，负失谐成分引起的相位偏移恰

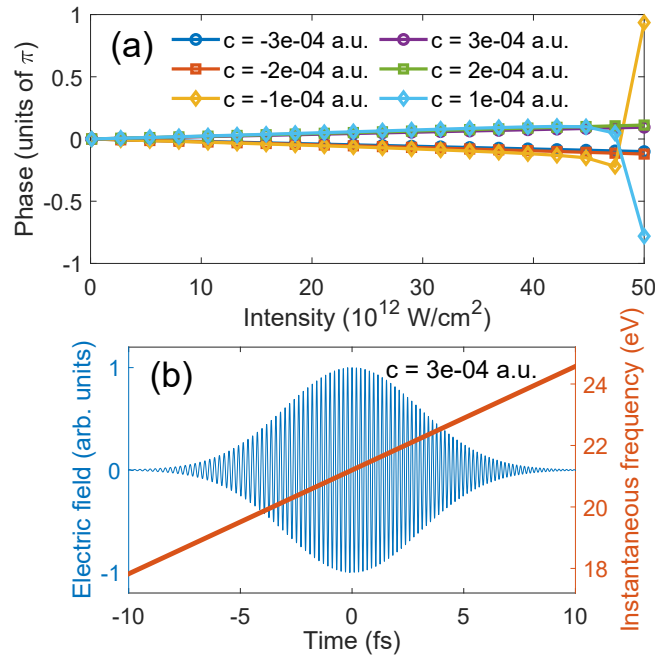


图 4-6 (a) 不同啁啾率下，偶极相位偏移随激光脉冲强度的变化。(b) 脉冲电场与其相应的瞬时频率的时域演化。

好与正失谐成分引起的偏移量相互抵消,使得在相互作用后无净相位偏移累积。图中偶极相位随强度的增加而逐渐增大的现象意味着该近似与实际情形间存在一定偏差。这些“无啁啾”子脉冲在时域上次序地与原子相互作用,其面对的初始条件不同,使得实际发生的动力学远远复杂于以上分析过程。尽管如此,与图 4-2 中无啁啾脉冲激发情形相比,在此处绝大多数强度下诱导的相位变化均被显著抑制。在较小的啁啾率下,脉冲强度的进一步提高导致了大小了近似为 π 的相位阶跃,可能的原因在于驱动脉冲中失谐较小的频率成分占比较大。由于实际通过高次谐波产生的 XUV 脉冲含有内在啁啾^[122],在自由电子激光脉冲产生过程中为了获得更高带宽也会人为引入一定啁啾^[123],因此通过啁啾脉冲操纵系统的动力学行为在实验上具有一定的可行性。

4.5 小结

本章研究了单束强场极紫外脉冲对简单能级体系动力学过程的直接操控。通过拟合 Fano 线型公式,从吸收线型的对称性改变所提取的偶极振荡相位,可用于量化与外场相互作用后相应的量子态间的相位偏移。通过非线性光学中单色光场与二能级相互作用的非微扰解析模型,解释了该相位偏移对驱动激光脉冲参数的依赖。该项研究不仅揭示了弱场激发近似的局限性,同时也指出目前超快光学领域常用的三种用于模拟瞬态吸收光谱线型变化模型的不适用性,还有助于实现高频脉冲对超快原子动力学过程的直接控制。

第五章 共振线型在宏观介质中的建立及完美共振吸收

5.1 引言

对光脉冲的有效操纵是实现量子动力学过程控制的基础。基于可编程空间光调制器的飞秒脉冲整形技术已在量子相干控制领域取得了很大成功^[124--126]。而由于液晶或声光调制器等装置均依赖于光谱色散，现有的调制材料低的衍射系数和高的吸收系数阻碍了该技术往高频端的直接推广^[127]。最近的研究表明，对光波的控制还可通过在时域上调制其诱导的系统的极化响应来实现。通过阿秒瞬态吸收光谱学，极紫外脉冲的时域压缩^[85]和空间改向^[128, 129]已被成功证明。最近，借助单个和紧密相接共振跃迁附近折射率对频率的依赖，研究人员报导了极紫外脉冲的空间偏转^[130]和光谱压缩^[131]。结合最近基于高次谐波产生或自由电子激光的极紫外和 X 射线光源的研究进展及其广泛使用，对短波脉冲的有效整形有望实现对原子及原子核动力学过程的控制^[132, 133]。

实现介质对电磁辐射的有效吸收是当今世界一系列技术变革的前提，例如电磁信号的频域滤波，以及能量转换器件的高效实现等。在 2010 年，耶鲁大学 A. D. Stone 组提出，通过将激光系统中的增益介质替换为吸收介质，入射的激光脉冲能在特定条件下被光学共振腔完美吸收^[135]，其工作原理如图 5-1 所示。这种光学系统与常用的激光系统通过时间反演对称性相关联，被称为相干完美吸收器 (coherent perfect absorber) 或者反激光 (anti-laser/time-reversed laser)。该概念已于 2011 年在实验中通过硅共振腔被证明^[136]，并于近期在无序介质中实现了对入射光强超过 99.78% 的吸收^[137]，在光学传感，光伏和光电检测等领域有着广泛的应

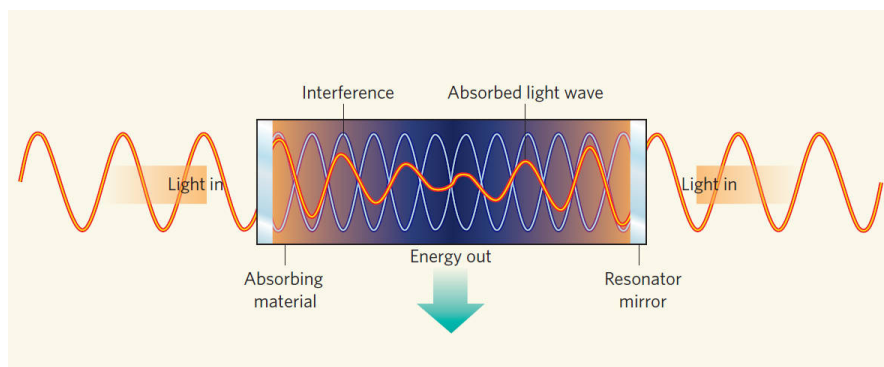


图 5-1 相干完美吸收器工作原理^[134]。入射的相干激光光束与共振腔内的吸收介质相互作用。在特定的激光相位关系下，共振腔两侧反射光能实现与透射光间的完全相干相消，总体表现为介质对入射光束的完美吸收。

用前景^[138]。

5.2 Fano 共振在宏观介质中的建立

对多电子动力学过程的理解有助于将阿秒物理相关研究拓展至复杂系统中。一个与电子关联效应相关的教科书实例是自电离，其中单电子近似已不再适用。Ugo Fano 在理论上解释了自电离态在频域的非对称线型^[139]，即著名的“Fano 线型”。Fano 线型来源于基态到连续态的两路径的干涉：直接电离，以及先共振激发至不稳定的自电离态，随后自电离。通过超高的时间分辨研究 Fano 共振在超短时间尺度上的建立过程是阿秒物理的一个重要研究方向，已于近年在实验上通过瞬态吸收光谱^[62,140]和光电子谱^[141]测量得出。对光吸收测量，从之前研究人员以及上述章节工作中可知，宏观介质会引起激发脉冲的时域整形，改变脉冲与介质相互作用过程，探究此情形下 Fano 共振在时域建立过程是十分必要的。

5.2.1 理论方法

图 5-2 展示了本节所关注的物理过程，当靶系统为氦原子时，其在概念上与文献 [62] 中所证明方案类似。这里考虑的 He 原子系统包含基态 $1s^2$ ，背景连续态 $1sE_p$ ，以及嵌于连续态中的双激发态 $2s2p$ 。阿秒 XUV 脉冲 FWHM 持续时间为 500 as，峰值强度为 10^{11} W/cm²，固定于 $t = 0$ 处。其中心频率为 60.15 eV，与 $1s^2$ - $2s2p$ 跃迁频率匹配。NIR 脉冲的中心波长为 760 nm，持续时间为 7 fs，峰值强度为 20 TW/cm²，与 XUV 脉冲间的时间延迟为 τ 。两脉冲在时域上初始均为高斯脉冲。为了阐明脉冲传播过程中吸收线型的建立和重塑，我们将系统总的波函数展开为 $|\Psi(t, \tau)\rangle = c_g(t, \tau)|1s^2\rangle + e^{-i\omega_X t} [c_b(t, \tau)|2s2p\rangle + \int c_E(t, \tau)|1sE_p\rangle dE]$ ，其中 ω_X 为 XUV 脉冲中心频率。通过采用绝热消去连续态，以及旋波近似处理 XUV 激发过程后 [由于其高频以及低强度（峰值 Rabi 频率为 1.7 meV）]^[82]，XUV 脉冲作用下能级态系数的演化以及系统的极化响应可以通过数值求解含时 Schrödinger 方程求得。在计算中， $1s^2$ 和 $2s2p$ 态之间的偶极矩阵元、自电离衰减时间以及 Fano 不对称参数分别取 0.038 a.u.^[142]、17 fs 和 -2.77 ^[75]。NIR 脉冲的光致电离通过一解析的电离率 $\Gamma_4(t, \tau) = \alpha_4 I_{\text{NIR}}^4(t, \tau)$ 来表示，即 $\langle 2s2p|H(t, \tau)|2s2p\rangle = E_b - i\Gamma_4(t, \tau)$ ，其中 $H(t, \tau)$ 为时间及延迟依赖的哈密顿量， E_b 为 $2s2p$ 态的能量。对所使用的 NIR 光强下，Keldysh 参数^[143] $\gamma > 1$ ，为多光子电离区。4 表示达到 65.40 eV 的 $N = 2$ 电离阈，使剩余的 He⁺ 离子留在激发态所需的 NIR 光子数（NIR 中心光子能量为 1.63 eV）。通过在计算中选择合适的 α_4 数值， $2s2p$ 态随时间延迟布居的减少与文献 [62] 中 *ab-initio* 计算结果可比拟。由于 XUV 脉冲面积较小，基态在激发过程中的布居损耗可忽略不计。由此，通过自电离、XUV 直接电离以及 NIR

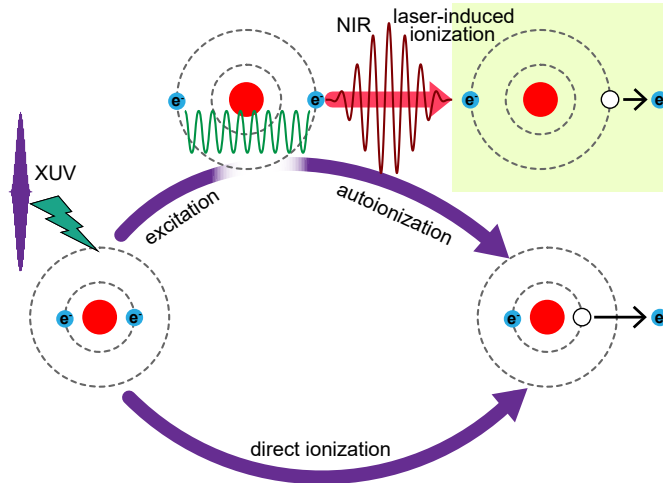


图 5-2 Fano 共振的形成。紫色箭头代表了氦原子在极紫外脉冲的作用下直接与间接电离通道。两量子路径的干涉导致了频谱中非对称的 Fano 线型的形成。由于自电离发生在数十飞秒的时间尺度，通过另一束附加脉冲引起的光致电离，间接电离通道可以被有效地关闭（红色箭头所示）。通过调节激发与电离间的时间延迟，可以实现对 Fano 线型建立过程的实时观测。

电离产生的电子对介质折射率的影响可忽略不计。对松聚焦下的激光光束，我们初步的计算表明了使用频域三维传播方程^[89]和一维方程^[78]的计算结果类似。介质的吸收特性通过光密度 OD 表征，其定义为 $OD(\omega, \tau) = -\log_{10}[I(\omega, \tau)/I_0(\omega)]$ ，其中 $I(\omega, \tau)$ 和 $I_0(\omega)$ 分别为 XUV 脉冲在介质出口和入口处的光谱。对于一给定的介质，传播效应由介质长度与密度的点积决定。在随后的计算中，考虑氦原子气体的介质长度为 2 mm，并通过调节其原子数密度（靶气压）来研究传播效应的影响。在此模型中，我们仅关注于以上三个能级，电离脉冲的实际波长在该分析过程中并不扮演关键作用。其它能级在与光场作用中的激发和耦合过程将使得 XUV 的时域频域特征变得复杂^[108]，加大了从中提取动力学信息的难度。尽管如此，前述机制在该强度下仍在其中占据主导地位，我们在模拟中忽略了其它过程的影响。类似的处理方式在单原子近似下已被成功应用^[62]，其被证明足以重现实验测量到的光谱结果。

5.2.2 结果讨论

图 5-3 展示了不同气压下的瞬态吸收谱计算结果。本工作主要关注于正时间延迟端，在该区域 XUV 激发和 NIR 电离次序发生。对图 5-3(a) 所示的低密度情形，其频谱演化可如下直观理解：Fano 共振首先通过 XUV 驱动脉冲激发。两脉冲重合后不久，由于极化响应在短时间内被终止，光谱中特征共振线型被抹去。此时，自然的弛豫过程被中断，间接电离路径在其中占据主导地位，改变了自然

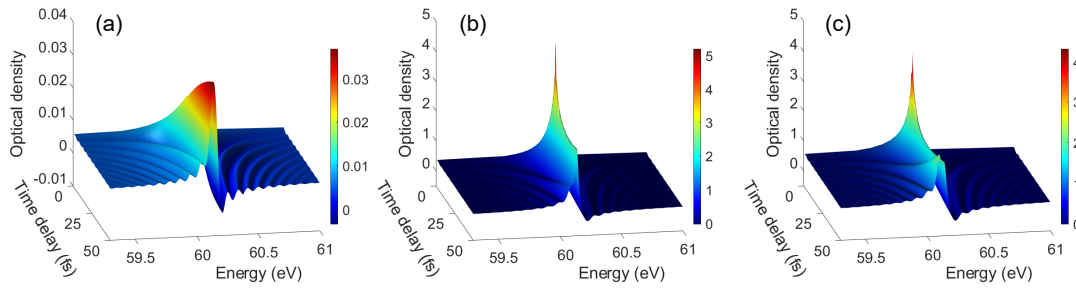


图 5-3 不同原子密度下共振能级附近的瞬态吸收光谱。在较低的原子密度 $4.0 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 下 (a)，吸收谱与文献^[62]中的测量结果类似。然而，当原子密度相对较高 2.6×10^{18} (b)， $4.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (c) 时，吸收谱的形貌截然不同，频谱中出现了尖峰以及额外的子结构。

的干涉结果。通过增加两脉冲间的时间延迟，电离选通门变得更宽，更多关于此双激发态的信息开始显现。吸收形貌变得更窄、特征形状更清晰，自然的 Fano 线型也逐渐建立起来。由于图 5-3 中使用的原子密度较低，介质的吸收与单原子响应极限下通过 $OD_s(\omega, \tau) \propto -\omega \text{Im}[\tilde{d}(\omega, \tau)/\tilde{E}(\omega)]$ ^[78] [其中 $\tilde{d}(\omega, \tau)$ 和 $\tilde{E}(\omega)$ 分别为系统频域的极化响应以及 XUV 光谱] 计算结果类似。如图 5-3(b) 所示，较高原子密度下的光谱整体形貌与低密度下的结果截然不同。线型中心附近出现了一个窄而尖的吸收峰，其幅度远高于更长的时间延迟下的结果。回顾本节中光密度的定义，OD 值大于 4 表明大于 99.99% 的入射脉冲在共振能量处已被介质吸收。此情形下，介质在较小的线宽内能将入射脉冲共振频率几乎完全地吸收，我们称其为高效共振吸收器。更高的原子密度导致了光谱进一步的调制，如图 5-3(c) 所示。吸收谱中的尖峰往更小的时间延迟端移动，并在较大的时间延迟处建立起了频谱子结构。

为了解释 XUV 脉冲在共振传播过程中光谱新特征的形成过程，以及与其脉冲时域结构的联系，在图 5-4(b) 和 5-4(d) 中，我们展示了在原子密度为 $4.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (对应于室温下气压为 160 mbar 的理想气体)，时间延迟分别为 20 和 40 fs 时系统的宏观吸收线型随传播距离的演化结果。为辅助分析，图 5-4(a) 和 5-4(c) 中展示了在不同介质位置处相应的单原子吸收线型。图 5-4(e) 展示了相关的时域电场包络形状。如前所述，由于诱导的极化响应与原始光场间的相互作用，激发脉冲在传播过程中后沿将被延长。由此，图 5-4(a) 和 5-4(c) 中的吸收光谱代表了传播整形后 XUV 光场激发的微观单原子响应。然而，需要指出的是，此处应用的电离选通门与将 NIR 作用视为对激发态振幅相位偏移的研究工作截然不同^[93]。在此，由于系统的极化响应被 NIR 脉冲有效地终止，其诱导产生的 XUV 脉冲后沿几乎不会延伸至电离选通门之外。尽管如此，随着脉冲的进一步传播，选通门

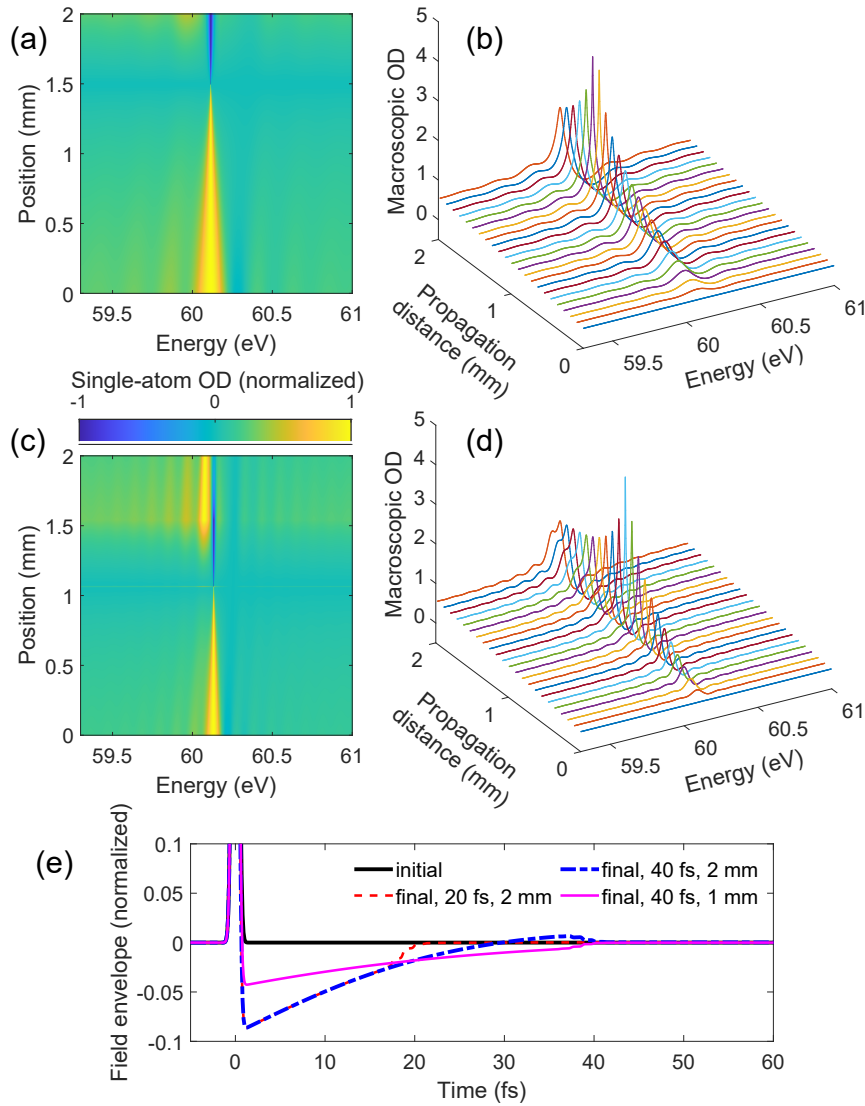


图 5-4 传播路径上的切片分析。沿传播方向上在不同位置处，原子密度为 $4.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ，时间延迟分别为 20 (a) 和 40 fs (c) 时的单原子吸收结果。其相应的宏观吸收线形在不同传播距离处的建立分别如图 (b) (d) 所示。为了方便比较，图中将每一位置处单原子吸收计算结果 OD_s 绝对值均进行了归一化。图 (e) 展示了初始的 XUV 电场包络（实部），以及在时间延迟为 20 和 40 fs 时，传播距离为 1 mm 和 2 mm 下的结果。在电离选通门内，包含了子脉冲的电场后沿在传播过程中逐渐建立起来。

内仍然可以建立一系列子脉冲 [尽管对于图 5-4(e) 中所使用的脉冲参数下，最多仅有两个子脉冲显示]。如图 5-4(b) 和 5-4(d) 所示，在 20 和 40 fs 时间延迟下，系统的宏观吸收线型起初均随着传播距离的不断增加而逐渐建立。随后，吸收在某一空间位置处达到极大值，并在之后随传播距离的进一步增加而逐渐减小。在该极值位置附近，单原子计算结果在共振能量处由吸收变成了辐射。除此之外，第一个子脉冲与坐标轴围成的面积此时与主脉冲对应值相当，这代表了异相间的极

化响应在传播过程中所建立起的巧妙平衡，并解释了光谱的非线性演化。该联系在数学上可由如下公式解释：在当前情形下，XUV 脉冲中心频率 ω_X 与跃迁频率 ω_0 相等，传播一段距离后的脉冲电场可表示为

$$E(t, x) = F(t, x)e^{i\omega_0 t} + \text{c.c.} = [F_m(t, x) + F_s(t, x)]e^{i\omega_0 t} + \text{c.c.} \quad (5-1)$$

其中， $F(t, x)$ 代表整个脉冲的包络， $F_m(t, x)$ 和 $F_s(t, x)$ 分别为主脉冲和子脉冲的包络。傅里叶变换后，正频部分的频域电场表示为

$$\begin{aligned} E(\omega, x) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F(t, x)e^{i(\omega_0 - \omega)t} dt \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} [F_m(t, x) + F_s(t, x)]e^{i(\omega_0 - \omega)t} dt. \end{aligned} \quad (5-2)$$

当 $E(\omega, x)$ 的模在传播过程中降至 0 或者一极小的数值后，频谱中则会出现上文所述的尖锐吸收峰。但由于 Fano 共振的非对称性，吸收峰的位置与共振频率存在些许偏离。频谱中的增强吸收发生在与 ω_0 略微失谐的频率 ω 处，并在某一空间位置处满足 $|E(\omega, x)| \approx 0$ 。由此，在此情形下主脉冲与后续子脉冲包络与坐标轴所围成的面积仅大致相等。时域上更宽的电离选通门（对应于更长的时间延迟）能加速该平衡的出现，使得增强共振吸收的出现所需的传播距离更短 [对比图 5-4(b) 和 5-4(d)]。更大的原子密度引入的效果与之类似，相应地，建立以上平衡所需的选通门宽度更短 [对比图 5-3(b) 和 5-3(c)]。

然而，需要指出的是，共振线形在频域的窄化并不对应着 XUV 光场在时域的拉长。该现象乍一看似乎违反傅里叶时频关系，但其本质来源于光密度 OD 的计算过程。图 5-5 中展示了在图 5-4(b) 中最佳吸收位置附近的吸收线形，以及该情形下的激光光谱和时域包络。图 5-5(b) 的透射光谱中清晰呈现出了一个底部幅度几近为 0 的凹陷，但其时域电场包络仍然局限在电离选通门内，如图 5-5(c) 所示。由于吸收光谱反映了系统的集体响应，并近似代表了不同位置处单原子计算结果的平均，其随传播距离的演化中蕴含了不同位置处的微观动力学信息。在较长的时间延迟处，进一步的空间传播导致的时域第二个子脉冲的出现 [参见图 5-4(e) 中的洋红实线和蓝色点划线] 与图 5-4(d) 中共振能量附加新形成的吸收峰的出现相吻合。该频谱子结构可以理解为 XUV 第二子脉冲和与其异相的第一子脉冲，以及剩余部分光场间的干涉导致。而在图 5-4(b) 中，电离选通门位于 20 fs 处，先于第二子脉冲建立前已有效地关闭 [参见图 5-4(e) 中蓝色点划线及红色虚线]。相应地，吸收光谱中没有子结构出现。因此，传播整形后的 XUV 脉冲时域形貌反应了其频谱特征，反之亦然，这总体上与文献^[93,108]中得出结论一致。此外，需要指出的是，Fano 线形的非对称性，对应于与电子关联效应有关的组态相互作用所引起的全局相位偏移^[60]，与此处光谱子结构的出现密切相关。在下节

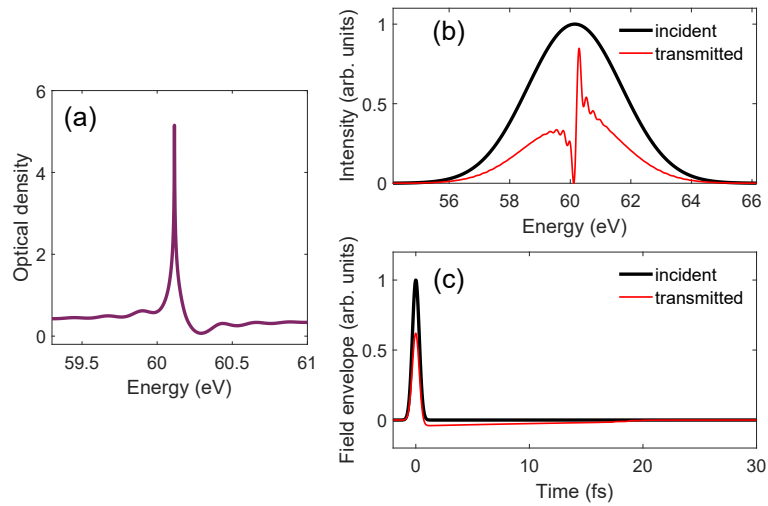


图 5-5 (a) 在原子密度为 $4.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ，时间延迟为 20 fs 时，系统在传播 1.5 mm 后的宏观吸收线形，其大致对应于图 5-4 (b) 中最强的吸收位置。相应的入射与透射光谱以及电场包络分别如图 (b) 和 (c) 所示。

中，我们将揭示对称的 Lorentzian 线型在宏观介质中的建立不会伴随着光谱子结构的出现，并进一步探究吸收增强的物理机制及其普适性。

5.3 0π 脉冲诱导产生的完美共振吸收

5.3.1 引言

超短激光脉冲与共振介质的相互作用是量子光学中的一个基本课题。在众多的脉冲形式中，零面积 (0π) 脉冲在共振情形下与两能级相互作用后不会产生净的激发，受到了广泛的理论^[97,144,145]和实验^[146--152]关注。根据脉冲面积定理 (area theorem)^[153--155]， 0π 脉冲可通过一束低强度脉冲在窄带宽的共振介质中自由传播产生。在脉冲传播过程中，其时域形状将受到明显地调制，产生正负交替变化的后沿，使得脉冲面积在传播足够长的距离后降为 0。尽管传播效应的引入会使得激光脉冲与介质的相互作用变得复杂，但传播产生的 0π 脉冲已成功应用于增强原子的瞬态激发^[149,150]，以及作为单光子与原子间强的相互作用的标志^[151,152]。除了对脉冲时域波形的改变外，传播效应所引起的光谱形貌变化在最近超快物理的研究中受到广泛关注。通过调制系统的极化响应，研究人员在阿秒瞬态吸收光谱中报导了共振线型的展宽和吸收峰中子结构的出现^[92--94]。

在本节中，我们基于阿秒瞬态吸收光谱学提出并验证了一种操纵介质共振吸收特性的普适方法。通过时域选通法，分离并基准测试了一新颖且反直觉的现象，即通过部分激光电场在宏观介质中实现完美共振吸收。在共振条件下，这一

发现与时域中 0π 脉冲的受控形成紧密相连。该现象基于在时域上裁剪 XUV 脉冲，使得其传播后建立的子脉冲与主脉冲完美相干相消实现。与 5.1 节中介绍的相干完美吸收相比较，两种方法均依赖于干涉与吸收的共同作用，但本节所提出的方法涉及共振介质，而无需使用光学共振腔。该工作证实了通过频域相位操纵以及时域包络控制实现对激发脉冲的有效整形，有助于相干调控方案往高频波段的拓展。

5.3.2 数值方法及结果讨论

本质上讲，该工作核心等效于研究 Lorentzian 共振在宏观介质中的建立。采用的数值方法简要介绍如下，系统的波函数可展开为 $|\Psi(t, \tau)\rangle = c_1(t, \tau)|1\rangle + c_2(t, \tau)e^{-i\omega_{12}t - \Gamma t/2}|2\rangle$ ，其中 $|1\rangle$ 和 $|2\rangle$ 分别代表基态和激发态， ω_{12} 为跃迁频率， Γ 为激发态的衰减率。系统由一束低强度的阿秒 XUV 脉冲激发，其表达式为 $E(t) = F(t)e^{i\omega_X t} + \text{c.c.}$ ，中心频率 ω_X 与跃迁频率 ω_{12} 一致。由于 XUV 脉冲载波频率与跃迁频率匹配，且强度较低，采用旋波近似处理其与介质的相互作用，以便提取在传播过程中包络信息 $F(t)$ 在路径上的演化。系统与 XUV 脉冲作用下的动力学演化可通过数值求解含时 Schrödinger 方程得出，而上能级态系数在与飞秒 NIR 光作用下的损耗通过一衰减率 $\Gamma_n(t, \tau) = \alpha_n I_{\text{NIR}}^n(t, \tau)$ 来考虑，即 $\langle 2|H(t, \tau)|2\rangle = \omega_{12} - i\Gamma/2 - i\Gamma_n$ 。在此模型中，NIR 的脉冲强度 I_{NIR} 足以将激发态电子完全电离（ n 代表电离所需光子数），通过选取合适的 α_n 以实现 NIR 脉冲经过后系统的极化响应变为 0。由于电离依赖于瞬时电场强度，在计算中使用了 $I_{\text{NIR}}(t, \tau) = E_{\text{NIR}}^2(t, \tau)$ 而非其强度包络。电离对激光强度的高度非线性依赖使得有效的截断时间短于 NIR 脉冲持续时间。在与脉冲共同运动的参考系中，XUV 脉冲在传播方向上的空间演化可近似为^[78]

$$\frac{\partial}{\partial x} \tilde{E}(\omega, \tau, x) = -2\pi i \frac{\omega}{c} \tilde{P}(\omega, \tau, x), \quad (5-3)$$

其中 $\tilde{P}(\omega, \tau, x)$ 和 $\tilde{E}(\omega, \tau, x)$ 分别代表频域上时间延迟和空间位置依赖的极化响应和 XUV 光谱。光密度与上节定义相同，即 $\text{OD}(\omega, \tau) = -\log_{10}[I(\omega, \tau)/I_0(\omega)]$ 。

图 5-6(a) 中展示了介质长度为 0.3 mm，原子密度 $N = 1.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ （室温下气压约 5 mbar 的理想气体）时计算得到的瞬态吸收光谱。计算所用原子参数为： $\omega_{12} = 21.2 \text{ eV}$ ， $\mu_{12} = 0.42$ ， $n = 3$ ，系统类似于由氦原子基态 $1s^2$ 及激发态 $1s2p$ 组成。选用的上能级衰减率为 $\Gamma = 1/60 \text{ fs}^{-1}$ ，其对应的自然线宽约为 11 meV，电离系数 $\alpha_3 = 8 \times 10^8$ 。XUV 脉冲中心固定于 0 时刻，其 FWHM 宽度为 500 as，峰值强度为 10^{11} W/cm^2 。NIR 脉冲 FWHM 宽度为 7 fs，中心波长为 760 nm，峰值强度为 20 TW/cm^2 。两脉冲初始包络均为高斯形。本工作关注于正时间延迟端，XUV 激发与 NIR 电离次序发生时的动力学演化。对于较小的时间延

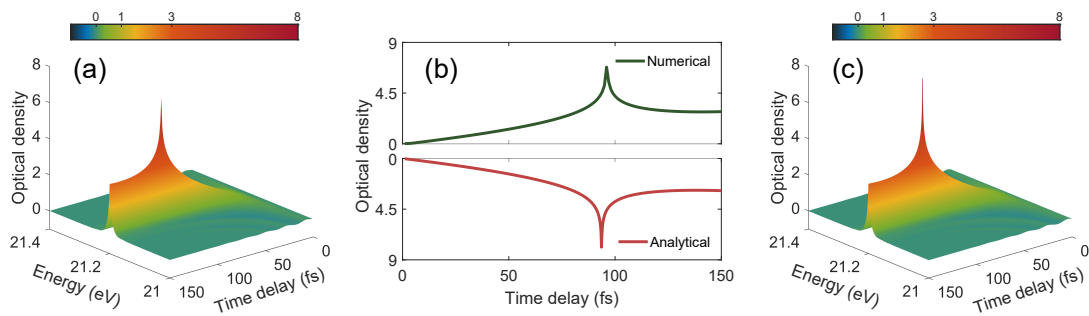


图 5-6 (a) 数值和 (b) 解析计算的共振能量附近的瞬态吸收光谱，其展示了 Lorentzian 共振在宏观介质中的建立。图 (b) 展示了共振能量处的光密度随时间延迟的演化。

迟，共振线型被抑制，光谱形貌宽且弱。随着时间延迟的增加，系统的极化响应得以在更长的时间尺度上演化，光谱中展现更多跃迁的信息，吸收线型逐渐建立起来。引人注目的是，光谱在 100 fs 左右处出现了一窄而尖的吸收峰，其幅度随时间延迟的进一步增加而降低。与 5.4.4 节中稀薄气体极限下结果相比，光谱的非线性演化清晰地表明该情形已超越单原子响应近似，光与物质的集体相互作用在该过程中扮演重要作用。为了突出光谱随时间延迟的奇特演化，图 5-6(b) 中展示了共振频率处的光密度 OD，其代表了每一时间延迟下频域上吸收最强位置。回顾光密度的定义，OD 大于 6 表明绝大多数的入射光强度已被介质所吸收，其已达到超过了 6 个数量级的衰减。对入射光谱共振频率出很小带宽内近乎完全的吸收，我们称之为无腔的完美共振吸收。

为了理解计算结果中展现的光谱演化行为，我们对该物理过程及相应的 XUV 脉冲在传播过程中的演化规律定性解释如下。在介质起始处，较早抵达的 XUV 脉冲将介质激发。由于两能级间较长寿命的相干，弛豫过程中极化响应将诱导产生以共振频率振荡的新电场，叠加在原电场尾部。新电场与原电场间相位差为 π ，两者间的相消干涉导致了透射光谱中共振频率处的凹陷。随着脉冲的进一步传播，尾部的电场可激发次生极化响应，使得产生的新电场既包含与原电场同相、也包含异相成分。该过程循环往复，直至脉冲离开介质。通过后续的 NIR 脉冲截断时域的动力学演化，截断前的偶极响应及子脉冲的相位与自由演化情形相比几乎不受影响。由此，主脉冲与子脉冲间的干涉导致透射光谱中仍为一纯粹的凹陷，对应于图 5-6(a) 中一直维持的对称的吸收线型。由于与子脉冲间的相位关系仍然保持，光谱共振峰附近无复杂的子结构的出现，与之前宏观介质的瞬态吸收中涉及偶极子相位偏移的结果^[92--94,156]截然不同。完美共振吸收峰的出现将在后文中讨论。

在一定近似条件下，对上述过程的理解可被大大简化。解析模型的示意图如图 5-7 所示。对于实验室中通过高次谐波产生的极紫外脉冲，其与介质的相互作

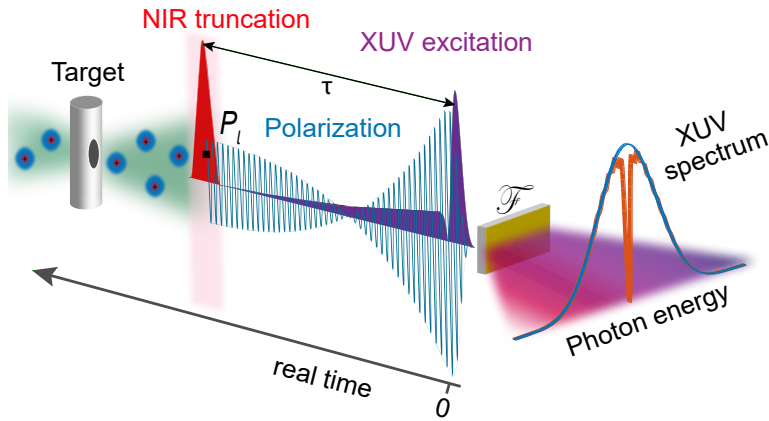


图 5-7 宏观介质中激光时域选通共振跃迁的原理示意图。低强度的 XUV 脉冲先到达介质，激发系统的极化响应。后者在时域上指数衰减，并激发产生较原脉冲持续时间更长的新电场。穿过介质一定距离后，XUV 脉冲将建立起一长的脉冲后沿，其诱导产生的极化响应在时域上展现出复杂的形状。后续的李R脉冲通过将激发态完全电离，截断了极化响应的自由演化。通过调节两脉冲间的时间延迟，可以将极化响应以及 XUV 脉冲后沿限制在不同时域宽度内。 P_l 代表在任一空间位置处 $t = \tau$ 时刻的极化响应，将在正文中做进一步的阐释。

用适用于一阶微扰论。通过将 NIR 脉冲的截断效应视为无限短，极化响应在频域的表达式可写为（解析模型的推导见 5.3.3 节）

$$\tilde{P}(\omega, \tau, x) = \chi(\omega)\tilde{E}(\omega, \tau, x) - \frac{i\chi(\omega)}{\sqrt{2\pi}N\mu_{12}^2}P_l e^{-i\omega\tau}, \quad (5-4)$$

其中线性极化率定义为 $\chi(\omega) = N\mu_{12}^2/(\omega_{12} - \omega + i\Gamma/2)$ 。 P_l 代表了截断发生时刻系统的极化响应 [即, $P(t = \tau, \tau, x)$]，其表达式可写作

$$P_l(\tau, x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \chi(\omega)\tilde{E}_0(\omega, x)e^{i\omega\tau}d\omega. \quad (5-5)$$

其中， $\tilde{E}_0(\omega, x)$ 代表了在介质中自由传播情形时的电场，其演化规律可由光学 Helmholtz 方程的解给出

$$\tilde{E}_0(\omega, x) = \tilde{E}(\omega, 0)e^{-2\pi i \frac{\omega}{c}\chi(\omega)x}, \quad (5-6)$$

对传播过程中电场频域累积相位的控制可通过改变原子密度和介质长度来实现。尽管如此，在该工作中，介质的光学厚度固定，我们主要关注于脉冲自然整形及相关频域特性的时域操纵。

图 5-6(c) 及 5-6(b)（下图）分别展示了解析计算的瞬态吸收光谱以及共振频率处的光密度随时间延迟的演化。相较于数值计算结果，必要的光谱特征已被重现。两者间的总体符合证实了解析模型及其中使用的两个近似的适用性，将在

后续的分析中继续采用。两者间的差异主要归因于解析模型中 NIR 截断效应被视作瞬时过程，而在数值计算中具有一定时域宽度。值得一提的是，频域中表示的解析表达式绕开了时域积分的需要，显著降低了数值计算量。出于计算考虑，在图 5-6(a) 及 5-6(b)（上图）中，采用了 1 fs 的时间延迟间隔，而在图 5-6(c) 及 5-6(b)（下图）中采用了更加精细的 0.2 fs。

XUV 脉冲在空间任一位置处的电场包络 $F(t, \tau, x) = E(t, \tau, x)/e^{i\omega_x t}$ ，可通过其频域表达式 $\tilde{E}(\omega, \tau, x)$ 的逆傅里叶变换得出。特别地，当截断宽度可视为无限短时，其可通过在时域上直接截取自由演化情形下的电场包络 $F_0(t, x)$ 近似得出。在共振情形下，即主脉冲与子脉冲的时域电场同频振动时 ($\omega_x = \omega_{12}$)，共振频率处的脉冲电场表达式可简化为

$$\begin{aligned}\tilde{E}(\omega_{12}, \tau, x) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F(t, \tau, x) dt \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\tau} F_0(t, x) dt.\end{aligned}\quad (5-7)$$

该表达式建立了 XUV 脉冲共振频率处的光谱与电场时域包络间的联系，其中后者包含了主脉冲以及传播诱导产生的子脉冲串。上文描述的完美共振吸收出现于 $\tilde{E}(\omega_{12}, \tau, x)$ 的模在传播过程中降为 0 时。这对应于主脉冲与新建立子脉冲的时域包络完美相消，使得整个脉冲包络包围的面积为 0 的情形。该现象来源于主脉冲与子脉冲间的光谱干涉，使得共振频率处的光谱成分在特定条件下被完美相干相消。此外，有趣的是，除了一常数因子 $2\sqrt{2\pi}\mu_{12}$ 外，式 (5-7) 与截断后的 XUV 脉冲面积的表达式完全一致。由此，频域中完美共振吸收的出现表明了时域上 0π 脉冲的建立。完美吸收的程度与此过程中形成的 0π 脉冲精度密切相关。该工作所采用的电离选通门有效地充当了 XUV 脉冲包络的超快快门，将其在时域上局限于有限的范围内。快门速度取决于激发态布居损耗时间，其位置可由两脉冲间的时间延迟调节。区别于积分整个时域脉冲包络的传统方法，该时域截断方案使得激发脉冲的脉冲面积在中等光学厚度下即可下降为 0。

在不同时间延迟下，通过时域积分截断后的电场包络得到的共振频率处的光密度如图 5-8 中蓝色点线所示，其与之前的解析模型计算结果实现了很好的符合。值得注意的是，其预示了在更大的时间延迟处又一完美共振吸收峰的出现，表明在该光学厚度下 0 脉冲面积的再一次满足。图 5-8 中展示的解析计算结果（橙色实线）也证实了这一发现。在给定驱动脉冲和靶介质参数后，基于式 (5-6) 和 (5-7) 的计算方法对完美共振吸收出现的预测十分有效，如图 5-8 中所示。对于远离脉冲中心的激光包络后沿，其对脉冲面积贡献十分有限。由此，共振频率处的光密度在较长的积分时间（时间延迟）下几乎不随其增长而进一步变化。随时间延迟的持续增加，几乎恒定的光密度值可视为自由演化情形下的结果。由

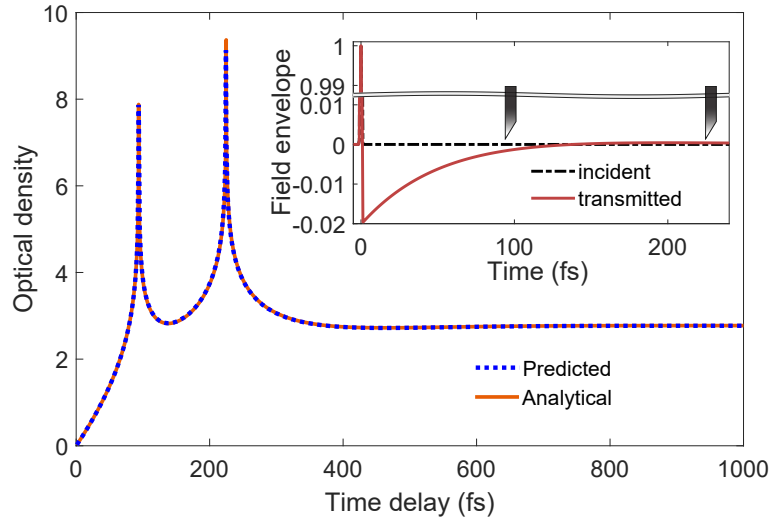


图 5-8 共振能量处的光密度随时间延迟的演化。所嵌小图展示了入射以及自由演化情形下透射的 XUV 电场包络，其中 y 轴上设置了一断点。完美共振吸收实现处的快门位置以刀口符号标记。

此可得，相较于自由演化情形，通过时域选通有效地控制两能级跃迁，可减少其对共振频率的光辐射的吸收，抑或是实现 5 个数量级的吸收增强。

尽管在此节中只讨论了一组参数下的计算结果，本章的后续部分还将探究不同激光和原子参数对结果的影响。此外，与理论学者合作，通过数值求解 He 原子在单电子近似下的含时 Schrödinger 方程 (TDSE) 及三维 Maxwell 传播方程 (MWE)，我们还证明了该方案在真实介质中的可行性。图 5-9 展示了类似脉冲和介质参数下的计算结果，共振吸收中的局部增强表明了该方案的普适性，可应用于其它原子体系。鉴于其共振特性，该方案还有望推广至共振能量所在的任何频段。在时域上通过另一束脉冲快速地调控脉冲共振频谱，还为光-光调制器的发展提供了新的可能性^[128,157]。

5.3.3 解析模型的推导

将系统的波函数 $|\Psi(t, \tau)\rangle$ 带入 Schrödinger 方程，得到态系数的含时演化表达式如下

$$i\dot{c}_1(t) = -\mu_{12}E(t)e^{-i\omega_{12}t - \frac{\Gamma}{2}t}c_2(t), \quad (5-8)$$

$$i\dot{c}_2(t) = -\mu_{12}E(t)e^{i\omega_{12}t + \frac{\Gamma}{2}t}c_1(t). \quad (5-9)$$

系统的极化响应可表示为

$$P(t) = \mu_{12}c_1(t)c_2^*(t)e^{i\omega_{12}t - \frac{\Gamma}{2}t} + \text{c.c.} \quad (5-10)$$

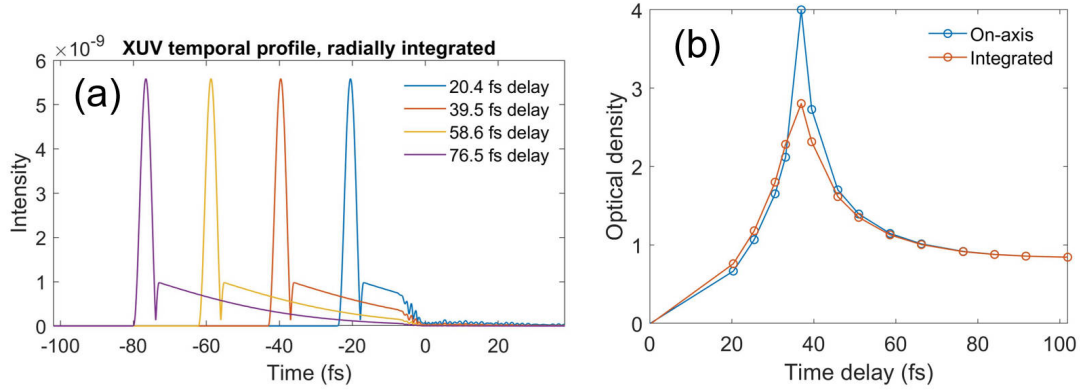


图 5-9 类似脉冲和介质参数下 TDSE-MWE 计算结果。(a) 透射的 XUV 脉冲时域强度包络。NIR 脉冲中心为 $t = 0$ ，其在时域上截断 XUV 脉冲后沿。(b) 对应的共振光吸收随两脉冲间时间延迟的演化。

当 XUV 激光脉冲的强度相对较低，其脉冲面积较小时，基态布居在相互作用中的损耗可忽略 [即 $c_1(t) \approx 1$]。仅考虑其正频成分时，任一空间位置处的极化响应表达式可推导得出：

$$\frac{\partial}{\partial t} P(t, x) - (i\omega_{12} - \Gamma/2)P(t, x) = -iN\mu_{12}^2 E(t, x). \quad (5-11)$$

无其它外场参与相互作用时，上式的傅里叶变换表达式为

$$\tilde{P}(\omega, x) = \frac{N\mu_{12}^2}{\omega_{12} - \omega + i\Gamma/2} \tilde{E}(\omega, \tau, x). \quad (5-12)$$

回顾线性响应的表达式，可将系统的极化率定义为 $\chi(\omega) = N\mu_{12}^2 / (\omega_{12} - \omega + i\Gamma/2)$ ，其中 N 代表原子数密度，其在均匀的靶介质中被视做常数。

NIR 脉冲到达后，系统的极化响应在时域上被截断，图 5-10 为该物理过程的示意图。当截断过程在时域上无穷短时，其效果可视为在自由演化的极化响应上附加了一选通门，即 $P(t \leq \tau, \tau, x) = P(t, x)$ ， $P(t > \tau, \tau, x) = 0$ 。截断后的极化响应在频域的表达式为

$$\tilde{P}(\omega, \tau, x) = \chi(\omega) \tilde{E}(\omega, \tau, x) - \frac{i\chi(\omega)}{\sqrt{2\pi}N\mu_{12}^2} P_l e^{-i\omega\tau}. \quad (5-13)$$

其中， P_l 代表截断时刻的极化响应 [即 $P(t = \tau, \tau, x)$]，其可由自由传播的电场 $\tilde{E}_0(\omega, x)$ 通过线性响应的表达式和逆傅里叶变换得出

$$P_l(\tau, x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \chi(\omega) \tilde{E}_0(\omega, x) e^{i\omega\tau} d\omega. \quad (5-14)$$

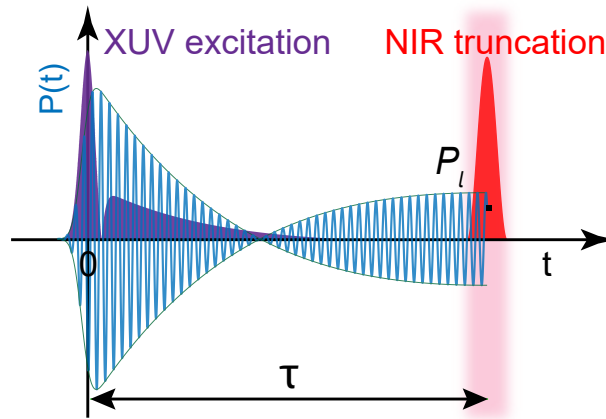


图 5-10 穿过介质一定距离后，系统的极化响应在时域的示意图。

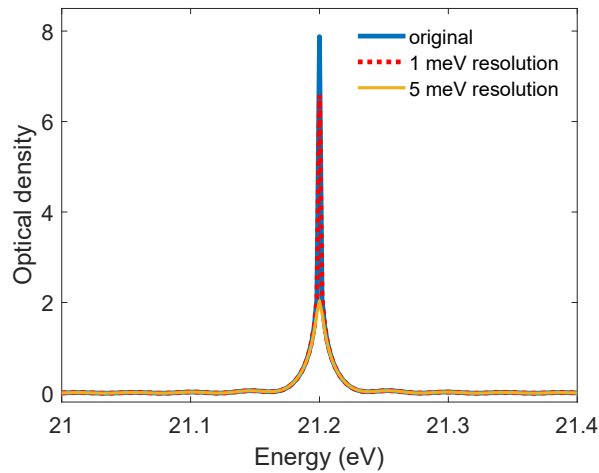


图 5-11 考虑有限光谱分辨率后计算所得吸收线型。

5.3.4 光谱分辨率的影响

为了探测上文描述的完美共振吸收，足够的光谱分辨率是十分必要的，否则尖锐的光谱特征会被抹平。为了在模拟中考虑此实际限制，在计算光密度前，入射及透射的 XUV 光谱需先与一高斯脉冲卷积，计算结果如图 5-11 所示。不难看出，为了分辨共振频率处光密度的局部增强、维持较高的 OD 值，光谱分辨率需高于共振自然线宽。尽管这对光栅光谱仪提出了很高的要求，另一可行的路线是通过在介质后放置又一个相互作用区域并检测其激发效率的变化。

5.4 脉冲、系统及介质参数的影响

为了证实通过在时域上截断脉冲包络以实现频域完美共振吸收的方案的安全性，及其对不同参数的稳定性，本节中开展了更多情形下的计算。对下文中所

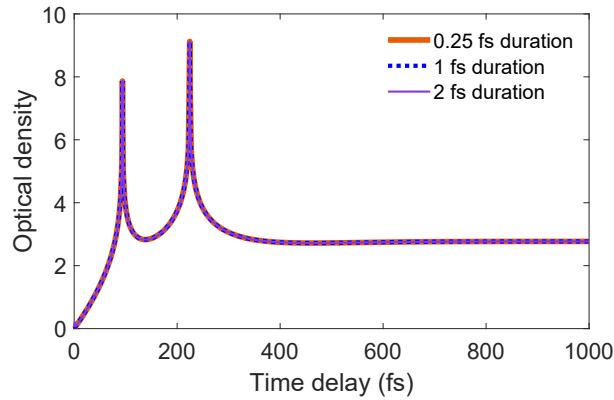


图 5-12 不同 XUV 脉冲宽度下共振频率处光密度的预测值。

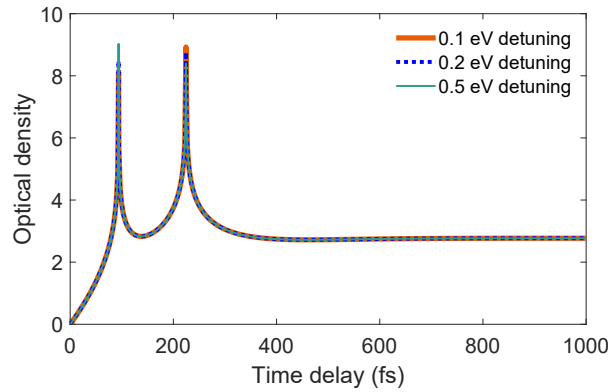


图 5-13 不同 XUV 中心频率相对于跃迁频率失谐下，共振频率处光密度的预测值。

展现的结果，若非特别说明，我们均独立地探究了不同脉冲及系统参数的影响，而保持其它参数与 5.3.2 节中一致。

5.4.1 脉冲宽度及中心频率

图 5-12 展示了相较于 5.3.2 节中，更长或更短的 XUV 脉冲驱动下的计算结果。我们发现，共振频率处 OD 随时间延迟的演化以及所达到的吸收峰值在不同的脉冲宽度下几乎保持恒定。

尽管在 5.3.2 节中仅讨论了共振情形，但该方案同样适用于非共振情形，即 XUV 主脉冲与其后沿振荡频率不同时。该情形下，截断后的脉冲共振频率处的电场表达式为

$$\tilde{E}(\omega_{12}, \tau, x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\tau} F_0(t, x) e^{i(\omega_X - \omega_{12})t} dt. \quad (5-15)$$

由于指数项中失谐 $\omega_X - \omega_{12}$ 非零，频域完美共振吸收的出现不再与时域 0π 脉冲的出现联系在一起。即使如此，如图 5-13 所示，共振吸收的局部增强仍在相同时间延迟处出现，尽管能达到的峰值大小不一。

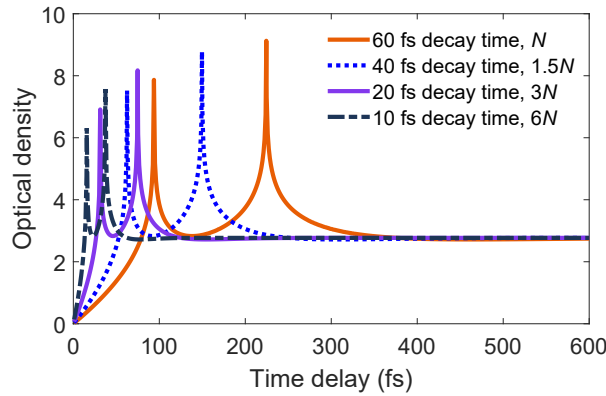


图 5-14 不同上能级衰减时间和介质原子数密度 N 的组合下，共振频率处光密度的预测值。

5.4.2 上能级衰减时间

根据光学 Helmholtz 方程的解 (5-6)，随上能级衰减时间 $1/\Gamma$ 的减小，介质极化率 $\chi(\omega)$ 会减小，电场在传播过程中累积的光谱相位也会相应地减小。为了减弱此效应影响，介质内原子数密度或介质长度可成比例地增加。图 5-14 展示了不同衰减时间和原子密度的组合下的计算结果。由于更短的衰减时间对应于更快的时域动力学弛豫，光密度随时间延迟的演化被相应地加快。尽管如此，计算结果中仍展现出了类似的演化趋势以及可比的 OD 峰值，其反映了该方法对短寿命能级系统的适用性。

5.4.3 非高斯时域脉冲形状

以上计算结果中，入射 XUV 脉冲时域包络均以高斯函数近似。而在极紫外波段，时域脉冲还存在两种常见形式，即阿秒脉冲串 (Attosecond Pulse Trains, APTs) 以及工作在自放大自发辐射 (Self-Amplified Spontaneous Emission, SASE) 模式下的自由电子激光脉冲，讨论这两种脉冲驱动情形下的结果是十分必要的。与前文一致，我们仅考虑低强度的 XUV 脉冲，其与介质的相互作用能用一阶微扰论的理论框架描述。APT 脉冲的电场表达式为

$$E(t) = \sum_q F_q(t) e^{iq\omega_{\text{NIR}}t} + \text{c.c.}, \quad (5-16)$$

其中 q 为谐波阶次， $F_q(t)$ 为其包络。考虑时域宽度为 10 fs 的 APT 脉冲，其由同强度的基频为 ω_{NIR} 的 9-17 阶奇次谐波合成。计算结果如图 5-15 所示，光密度随时间延迟的演化规律仍然存在。

对于 SASE 脉冲，采用部分相干法 (partial-coherence method)^[158] 描述其随机的电场形式。在计算中，SASE 脉冲中心频率为 21.2 eV，平均 FWHM 带宽为 1

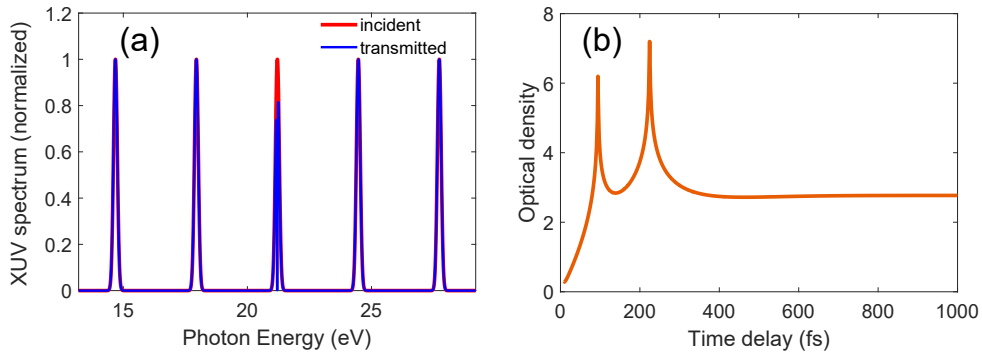


图 5-15 采用 XUV APTs 后的计算结果。(a) 自由演化情形下入射和透射的 XUV 光谱。(b) 共振频率处的光密度随时间延迟的演化。

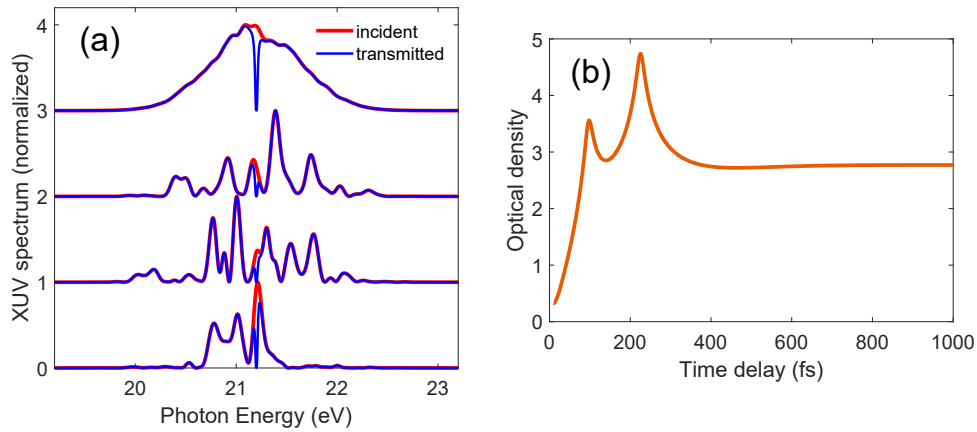


图 5-16 部分相干法描述 XUV SASE 脉冲下的计算结果。(a) 从上到下：自由演化情形下平均连续 500 发脉冲以及三个单发脉冲情形下的入射和透射光谱。(b) 平均 500 发低强度 XUV SASE 脉冲计算所得的共振频率光密度。

eV。在时域上，采用时域宽度为 20 fs 的高斯滤波函数用于考虑其平均脉冲宽度。在计算光密度前，入射和透射的 XUV SASE 脉冲先取多次计算的平均值。计算结果如图 5-16 所示，尽管驱动 XUV 脉冲具有随机性，共振频率处的光密度仍在两时间延迟处出现特征增强，与前文中采用全相干、具有明确时间延迟的 XUV 和 NIR 脉冲计算结果定性符合。事实上，驱动 XUV SASE 脉冲的随机性引起了两脉冲间的时间延迟约为 SASE 脉冲平均脉宽的抖动，抹平了光密度随时间延迟的尖锐的吸收增强。

5.4.4 稀薄气体极限

当原子密度为 $0.01N = 1.2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 时，计算所得光谱如图 5-17 所示。与单原子近似一致，其纯粹地展示了 Lorentzian 线型在时域的建立。与上文中较高密度下的计算结果相比，传播效应的贡献显而易见。通过在宏观介质中的传播，

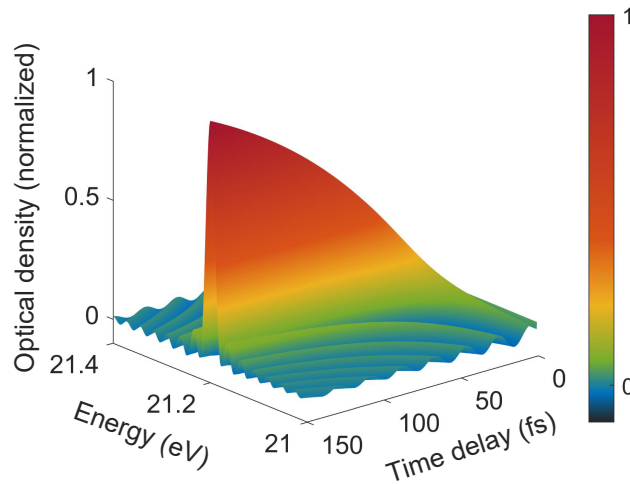


图 5-17 稀薄气体极限下归一化的瞬态吸收光谱，其展示了 Lorentzian 线型在时域的线性建立。

XUV 脉冲在时域和频域明显的整形成为了可能， 0π 脉冲才能在特定时间延迟下建立。

5.4.5 三能级情形

本小节关注于激发态临近能级的存在对完美共振吸收的影响，其超出了上述的两能级近似，描述了一更为实际的情形。为简便起见，这里考虑新的激发态 $|3\rangle$ 与 $|2\rangle$ 态相比具有相同的宇称、原子参数、及 NIR 电离率，除了不同的跃迁频率 ω_{13} ，两激发态与基态一起构成一 V 型三能级系统。对所考虑的足以实现超快快门的 NIR 脉冲强度，电离为主导的相互作用机制，其它 NIR 诱导的耦合过程可以被忽略。在计算中，我们使用与 5.3.2 节中相同的激光和介质参数，跃迁频率 ω_{13} 在两代表性的取值下计算结果如图 5-18 所示。在此情形下，XUV 脉冲后沿包含了两个不同振荡频率的电场成分，其引起了透射光谱中两吸收峰的出现。两脉冲间时间延迟较小时，光谱的展宽导致了吸收峰中干涉条纹的出现，其以两激发态间的频率差振荡。如图 5-18 所示，吸收峰中由于传播效应导致的局部吸收增强仍然存在，并在由 $|2\rangle$ 和 $|3\rangle$ 态相干激发所引起的振荡影响下仍十分明显。由于 XUV 脉冲中心频率小于 $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ 跃迁频率， ω_{13} 处尖锐吸收峰的出现也从侧面证明了该方法对不同 XUV 频率失谐的适用性。

为了检验 NIR 脉冲诱导的能级间耦合的影响，我们还考虑了新激发态 $|3\rangle$ 能量较 $|2\rangle$ 低 1.63 eV，两者具有相反的宇称，形成了一 Λ 型三能级系统。在计算中，考虑 $|3\rangle$ 态衰减率与 $|2\rangle$ 态一致，两能级间偶极矩阵元 $\mu_{23} = 2.7$ 。 $|3\rangle$ 态在外场下的电离率 $\Gamma_4(t, \tau) = \alpha_4 E_{\text{NIR}}^8(t, \tau)$ ，其中 $\alpha_4 = 1.85 \times 10^{12}$ ，以实现与 $|2\rangle$ 态电

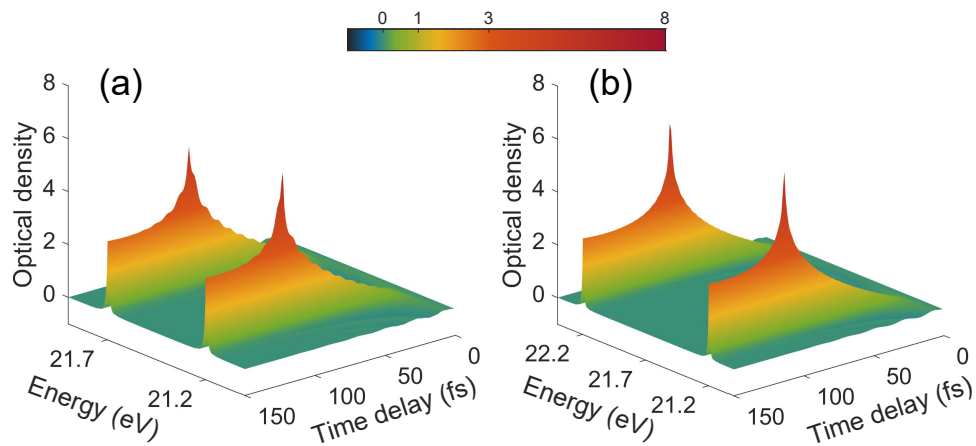


图 5-18 跃迁频率 ω_{13} 分别为 (a) 21.7 和 (b) 22.2 eV 时, 该 V 型三能级系统数值计算所得的瞬态吸收光谱。

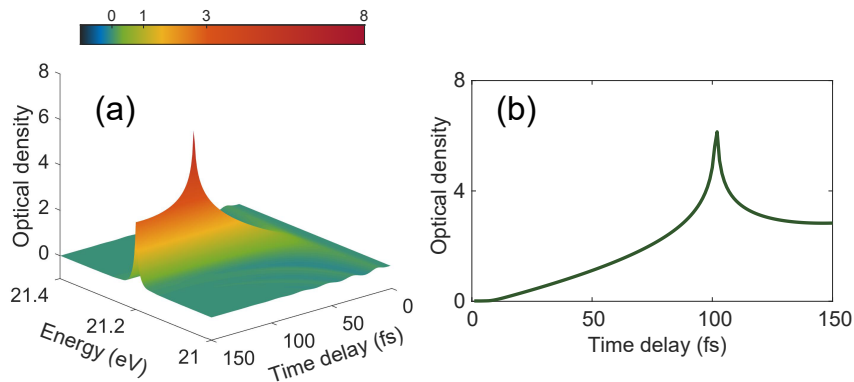


图 5-19 Λ 型三能级系统数值计算所得的 (a) 瞬态吸收光谱以及 (b) 共振频率 $\omega = \omega_{12}$ 处的光密度。

离率的匹配。系统瞬态吸收的计算结果如图 5-19 所示, 其中激光与介质参数仍与 5.3.2 节中保持一致。与两能级系统的数值结果相比, 光谱中的主要特征基本保持不变。由于系统在与 NIR 脉冲作用过程中伴随着两激发态间的布居转移, 其布居损耗及极化响应在时域的截断形式将会变得复杂, 使得光密度的局部增强略微移动至另一不同的时间延迟处。

5.5 小结

在本章第一项工作中, 我们探究了脉冲在宏观介质传播过程中, Fano 共振在超快时间尺度上的建立。通过数值计算, 发现了相较于单原子响应近似下结果, 吸收谱在较大的原子密度中出现的一系列新现象, 并通过进一步的计算证实了其与时域新建立的特征间的关联。这些研究结果表明系统对激发脉冲的

吸收可以通过调节附加脉冲的时间延迟和介质的光学厚度来强烈地操控，为实现对阿秒动力学过程的控制提供了新的可能性。

随后，在第二项工作中提出并证明了一种操纵两能级系统宏观吸收特性以及实现极紫外脉冲整形的普适方案。通过在时域截断系统的极化响应，对介质共振吸收特性的快速调节成为了可能，并能在特定条件下实现完美共振吸收。特别地，在共振激发情形下，后者还与时域上 0π 脉冲的出现紧密相连。进一步的分析展现了该方法在不同参数条件下的稳定性和普适性，并在实际的实验条件下仍然存在。对该现象的进一步探究有助于未来超快光开关装置的实现。我们期待在宏观介质中，复杂的光与物质相互作用及传播效应的共同作用，能为高频响应的时域操纵及脉冲整形提供更多的可能。

第六章 氦原子气体双激发态阿秒瞬态吸收研究

6.1 引言

1963年,美国国家标准局的Madden和Codling借助同步辐射光源,通过吸收光谱技术测量到了He、Ne和Ar原子中的新自电离态^[159]。由于He原子中60至65 eV范围内仅有一系列能级汇聚至He⁺离子N=2电离势,与单电子图像下壳模型预言结果不符。在同一期的论文中,Cooper、Fano和Prats提出,由于2snp和2pns态近简并,当两电子间的相互作用足够强时,一种更恰当的描述低于He⁺N=2电离势的氦原子双激发态的方式是将其写作2snp±ns2p,记作sp_{2,n±}^[160]。三位研究人员在文章中指出,“+”和“-”描述了两电子两种不同的共同运动方式,即两电子同时靠近或远离原子核,以及一个电子靠近核,另一个远离核;基态1s²到“-”系列的跃迁是准禁戒的。随着光谱分辨率的逐渐提高,人们借助同步辐射光源在实验上测到了“-”系列能级特征信号,其强度远低于“+”系列跃迁,如图6-1所示。但由于光子通量、信噪比以及光谱分辨率等一系列因素的制约,至今未有相关时间分辨测量结果报导。而对该类能级动力学过程的深入研究,有助于理解最基本的电子关联效应。

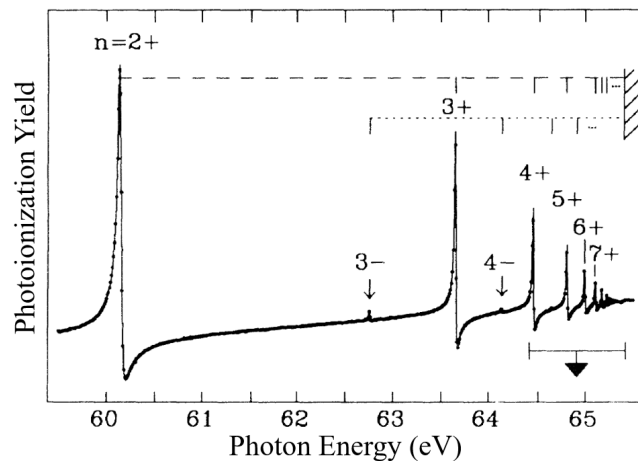


图 6-1 基于同步辐射光源开展的低于 He⁺N=2 电离势的氦原子双激发态电离产额测量结果^[161]。与相应的“+”系列能级相比,“-”系列能级光谱信号极弱,几乎无法分辨。

6.2 实验装置

本章中介绍的阿秒瞬态吸收测量工作在位于德国海德堡的马克斯·普朗克核物理研究所开展,附录中对其驱动光源开展了详细介绍,主要包含了 CEP 锁

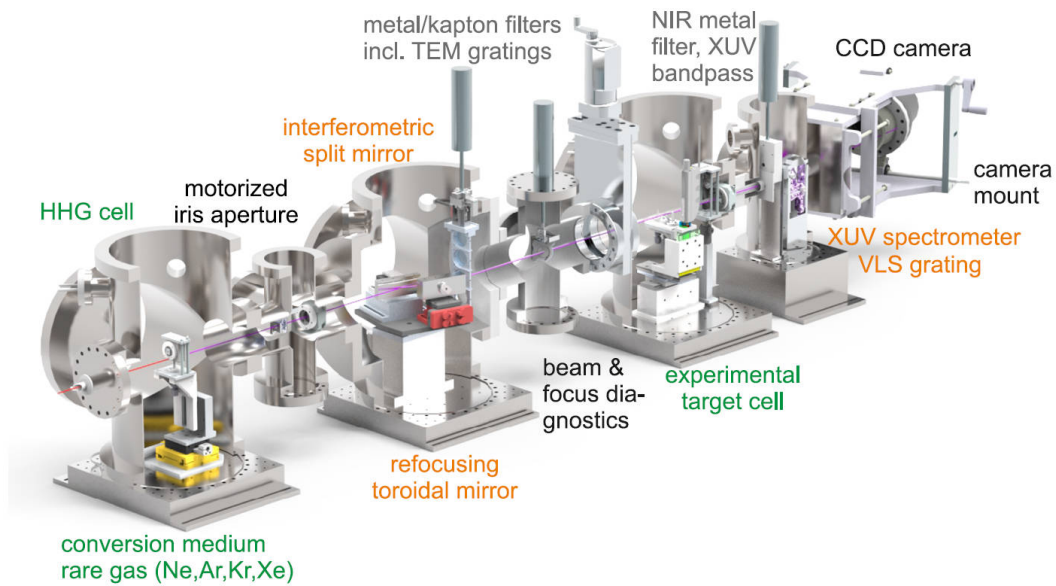


图 6-2 阿秒瞬态吸收束流线结构示意图^[162]。

定的飞秒激光系统，输出脉冲的频谱展宽、时域压缩及脉冲表征装置，本节主要介绍整套实验装置的核心部分—阿秒瞬态吸收束流线。

图 6-2 展示了阿秒瞬态吸收束流线的结构示意图，主要包含了三个真空腔及一个 XUV CCD 相机，文献 [162] 中已给出了其详细介绍。简而言之，入射激光脉冲首先在第一个腔体内在焦点附近与惰性气体相互作用，通过高次谐波产生 XUV 脉冲；驱动脉冲与产生的 XUV 脉冲在第二个腔体中实现时间和空间分离；两脉冲聚焦后在第三个腔体内与靶气体相互作用；最后，通过自制的高分辨紫外光谱仪探测透射的 XUV 信号。该束线采用共线掠入射的几何构型，既能实现 XUV 与 NIR 脉冲间时间延迟的高稳定性，还能在宽频谱上达到高反射率。

亚 5 fs 少周期 NIR 脉冲聚焦 ($f = 500 \text{ mm}$) 后被送入 HHG 腔，用于驱动产生 XUV 脉冲。由于 XUV 会被空气中的 O_2 、 N_2 等分子强烈地吸收，在空气中的特征传播距离小于 1 mm，由此整个束流线被置于高真空环境。驱动脉冲焦点大小可由束流线外光阑调节，光斑大小为 $100\text{-}30 \mu\text{m}$ ，对应峰值电场强度在 $10^{14}\text{-}10^{16} \text{ W/cm}^2$ 量级。HHG 气室由陶瓷管制成，外径 3 mm，内径 2 mm，中间钻有 $200 \mu\text{m}$ 直径的小孔以让光束通过。陶瓷材料有助于减弱高强度激光烧蚀效应，减少材料在真空中光学元件上的沉积，延长其使用寿命。HHG 气室安装于三维位移台上，沿激光传播方向 (Z) 为高精度电动位移台 (Newport TRA series)，用于调节气室与激光焦点相对位置以寻找谐波最佳相位匹配条件。

由于波长不同，两脉冲发散角不一 (XUV: $\sim 1 \text{ mrad}$; NIR: $\sim 15 \text{ mrad}$)。该特性后续被用于调节 NIR 脉冲的强度以及两脉冲间的时间延迟，如图 6-3 所示。首先，束线中与光束同轴的光阑用于遮挡外围的 NIR 脉冲，以实现对其强度的控

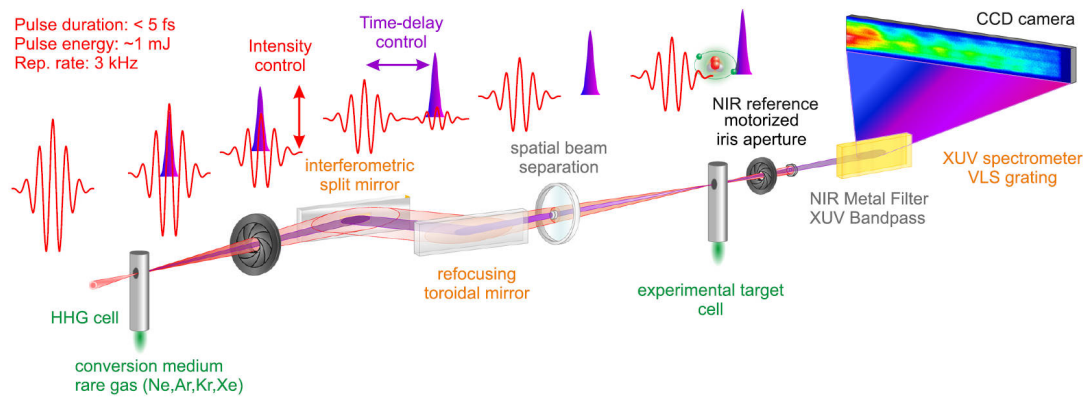


图 6-3 阿秒瞬态吸收束流线原理示意图^[162]。

制。两束光随后经分束镜 (split mirror) 及环面聚焦镜 (toroidal mirror, 又称轮胎镜) ($f = 350 \text{ mm}$) 反射, 聚焦后进入实验腔。光束在两镜面上均为掠入射 ($\theta \approx 15^\circ$), 以实现更广 XUV 频谱的高反射率。分束镜外镜 (outer mirror) 镀银, 用于反射 NIR 脉冲; 内镜 (inner mirror) 镀碳化硼 (boron carbide, B_4C), 用于反射 XUV 脉冲。镀碳化硼相对于镀金能实现对所关注的 XUV 频段更高的反射率^[163]。内镜被置于压电位移台上 (Physik Instrumente, PIHera), 能以纳米精度延垂直与镜面方向移动。该入射角度下, 位移量 d 与引入的时间延迟 τ 的关系为

$$\tau/d = 1.705 \text{ fs}/\mu\text{m}. \quad (6-1)$$

环面聚焦镜表面镀金, 该几何构型下其能将 HHG 焦点 1:1 成像至靶气室, 有效地避免了像差 (aberration) 的影响。但由于分束镜内镜的前后移动会导致 XUV 焦点相对于 NIR 焦点的偏移, 而典型的 NIR 和 XUV 焦点大小分别为 80 和 $20 \mu\text{m}$, 因此该装置的有效时间延迟测量范围为 50 fs 。此外, 对于实际情形, 存在一部分的 NIR 脉冲打在分束镜内镜上, 一部分的 XUV 脉冲被外镜所反射。为了过滤对应的光谱成分, 以尽可能实现两脉冲完全的时间和空间分离, 装置中使用了中心为 200 nm 厚的金属箔, 外侧为 $2 \mu\text{m}$ 的硝化纤维薄膜 (nitrocellulose membrane) 滤波组件。关注于不同的 XUV 波段, 实验中常选用 Al、Zr 或 In 的金属箔。在加工过程中, 金属箔片存在少许微孔是不可避免的, 这将导致一小部分 NIR 与 XUV 共同传播, 对实际的激光物质相互作用过程产生影响。

时空分离的 XUV 和 NIR 聚焦后进入第三个腔体, 与气室中的靶气体相互作用。靶气室安装在高精度 XYZ 三维位移台 (SMARACT) 上。该位移台配有闭环控制系统, 能在线读出当前位置, 保障了实验测量的可重复性。与靶气体相互作用之后, 光束中的 NIR 脉冲由一光阑遮挡, 散射光通过光纤收集, 可用于测量束流线内经过 HHG 产生, 分束镜和环面聚焦镜反射后的驱动脉冲光谱, 如图 6-4

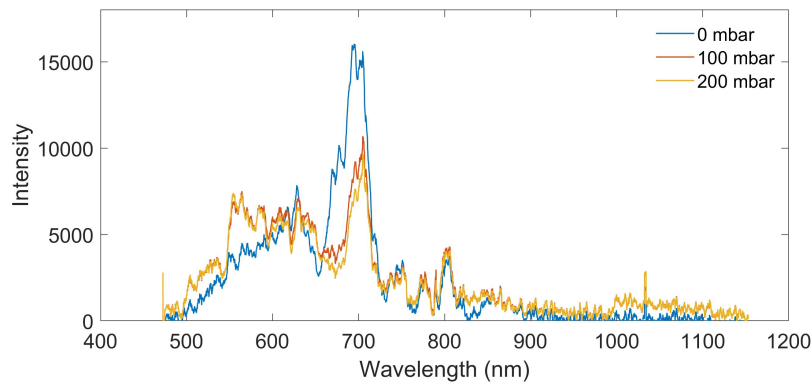


图 6-4 不同 HHG 工作气压，相同积分时间下，靶气室后测得的驱动脉冲光谱。HHG 产生气体为 Ne，光谱呈现了一定程度的蓝移，中心波长在 670 nm 附近，在可见光区域。

所示。透过金属箔的 XUV 脉冲由后续的高精度极紫外光谱仪收集。光谱仪包含了两块实验中可更换使用的凹面可变线宽光栅 (Hitachi)，以及一背照式热电冷却 CCD 相机 (Princeton Instruments, PIXIS 400B XO)。两光栅的光谱分辨范围分别为 11-62 nm (20-112 eV) 及 22-124 nm (10-56 eV)。CCD 相机包含 1340×400 像素，单个像素的尺寸为 $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ 。由于其无法记录整个光谱范围，其被放置于一机械架上，可沿焦平面移动，以探测所关注的波长范围。光谱仪的分辨能力 $E/\Delta E \geq 1500$ 。

在实际操作中，阿秒瞬态吸收束流线的调节简要步骤如下：

1. 粗调束流线。衰减 NIR 光束，移出 HHG 气室，移入束流线中安装的用于辅助校准的反射镜，导出光束。通过远场光斑，调节啁啾镜后及束流线前的反射镜，将光束对准光阑及分束镜内镜。
2. 移入 HHG 气室，调节其 x、y 方向，使光束通过气室孔径中心，移出靶气室。
3. 通入 HHG 产生气体，利用相位匹配，通过改变光楔在光路中的插入量、

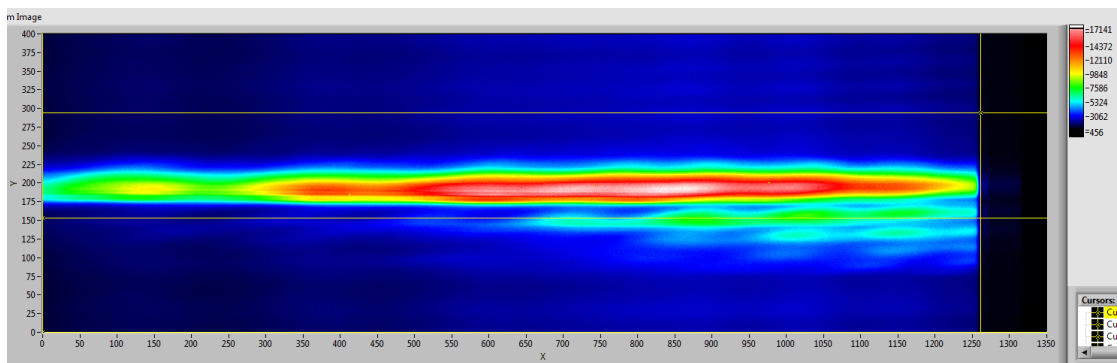


图 6-5 CCD 相机记录的 XUV 超连续谱。

HHG 气室的背压，气室相对于激光焦点位置，以及焦点的大小，优化 CCD 相机上的 XUV 光谱，使之窄且连续，如图 6-5 所示。

4. 放入 NIR/XUV 滤波组件，优化其与光束的相对位置。

5. 移入靶气室，调节其相对于光束的空间位置。

6. 优化 XUV 和 NIR 脉冲的时间空间重合。如对包含 55-58 eV 能量范围的光谱，可在靶气室内通入 Xe 气，在较高的 NIR 脉冲强度下通过光谱中 Xe⁺ 的特征吸收信号，优化分束镜外镜等。

7. 通入靶气体，开展实验测量。

6.3 实验测量与数据处理

该研究工作选用 Ne 作为 HHG 产生介质，气室背压为 100 mbar。靶气体为 He，气室背压在 0-500 mbar 区间内连续可调。时间延迟测量范围为 -20.5 fs 至 39 fs，步长为 170.5 as。XUV 光谱像素和能量对应关系可通过拟合 He 原子共振吸收谱线位置、以及 Al 箔吸收沿的位置标定。

吸收光谱学中，标准的数据分析计算光密度的方法为测量有无靶气体时的 XUV 光谱 $I_S(\omega)$ 和 $I_R(\omega)$ ，由 Beer-Lambert 定律，可以得出下式

$$OD(\omega) = -\log_{10} \frac{I_S(\omega)}{I_R(\omega)} = \frac{\rho \cdot l \cdot \sigma(\omega)}{\ln 10}. \quad (6-2)$$

借助文献中给出的非共振光吸收截面 $\sigma(\omega)$ 的测量结果^[164]，可以得出给定光学厚度下介质的长度密度点积 $\rho \cdot l$ 。

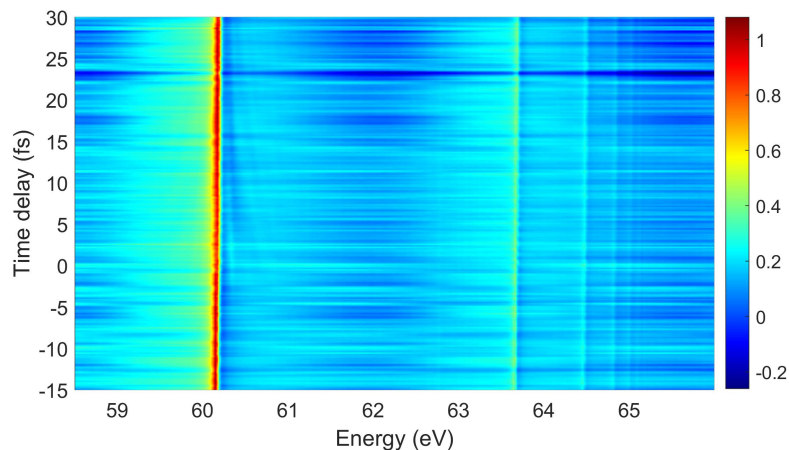


图 6-6 (几乎)无 VIS 光存在时，通过次序测量有无靶气体时的 XUV 光谱计算所得瞬态吸收谱。理想情况下，吸收信号应不随时间延迟发生改变，但由于谐波信号的抖动，吸收光谱在整个时间延迟范围波动较为明显。

在此研究工作中，我们主要关注于共振能量附近的光谱线型及其随时间延

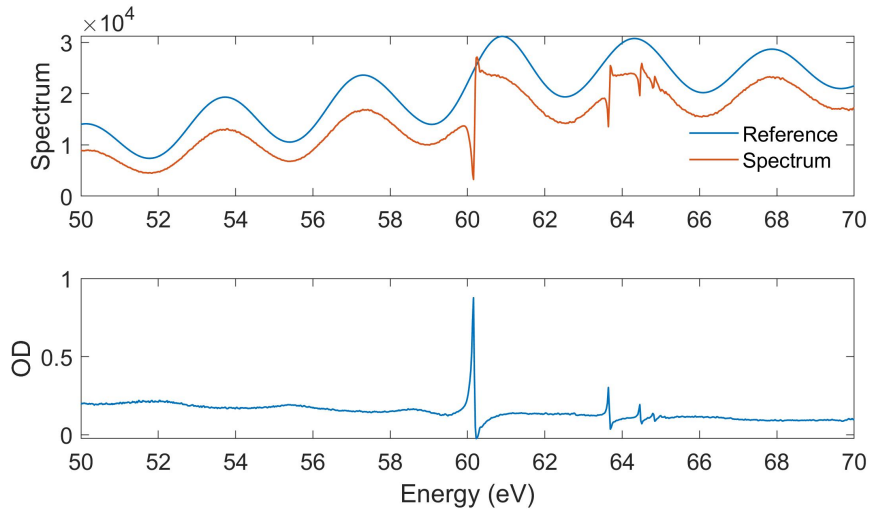


图 6-7 测量及重建的 XUV 参考光谱，以及相应的光密度 OD。

迟、VIS 脉冲强度、靶气体气压的变化。图 6-6 展示了通过次序测量光谱 $I_S(\omega)$ 和 $I_R(\omega)$ ，由 (6-2) 式计算所得的瞬态吸收光谱。由于高次谐波产生为高度非线性过程，对驱动脉冲光强、指向及 CEP 等参数非常敏感，谐波信号在实验测量过程中存在肉眼可见的抖动，该方法获得的 OD 波动较大，对实际物理过程的分析造成影响。在此研究中，通过低通傅里叶滤波，从每一测量到的 XUV 透射光谱中重建得出相应的谐波振荡 $I_f(\omega)$ 。再由现有的吸收截面 $\sigma(\omega)$ 及介质的长度密度点积 $\rho \cdot l$ ，重建出入射的参考光谱 $I_{R,rc}(\omega)$ ，由下式表示

$$I_{R,rc}(\omega) = I_f(\omega) \cdot e^{\rho \cdot l \cdot \sigma(\omega)}, \quad (6-3)$$

结果如图 6-7 所示。

6.4 实验结果及讨论

图 6-8(a) 展示了实验测量的吸收线型，在仅有 XUV 脉冲作用时，吸收谱中近乎仅能明显分辨“+”系列能级特征谱线，与通过同步辐射光源开展的实验结果基本一致。不同的是，在 XUV 和 VIS 两脉冲同时存在时，频谱中 $sp_{2,4-}$ 的光谱信号明显增强。图 6-8(b) 展示了相应的瞬态吸收光谱，从中可明显看出， $sp_{2,4-}$ 随时间延迟改变展现的动力学演化及谱线形状与“+”系列能级截然不同。其光谱信号在时间延迟为 0 附近开始显现，并随时间延迟的增大而逐渐减弱，直至无法分辨。这是本研究工作的主要关注点。

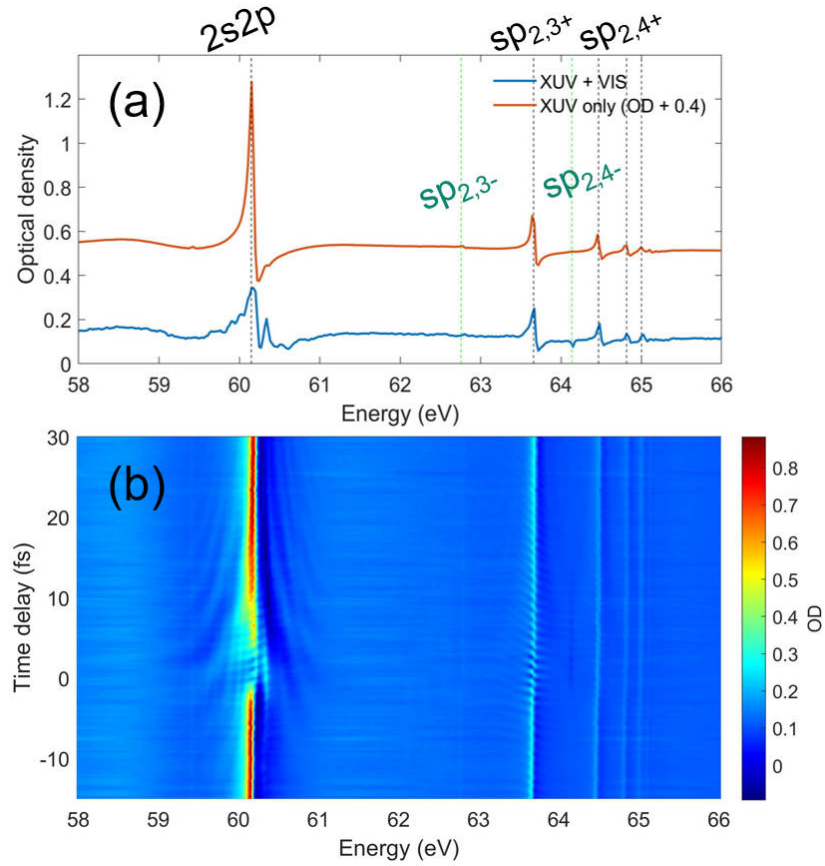


图 6-8 He 原子双激发态阿秒瞬态吸收测量结果。(a) 仅有 XUV 以及 XUV 和 VIS 脉冲共同作用（约 0 fs 时间延迟处）下的吸收线型。(b) 对应的瞬态吸收光谱，其中 $sp_{2,4-}$ 态展现了独特的动力学演化行为。

表 6-1 He 原子双激发态能级参数^[165]

Resonance	Energy (eV)	Γ (meV)	q
$2s^2$	57.7900	123.6	—
$2s2p$	60.1503	37.6	-2.74
$2p^2$	62.0600	6	—
$sp_{2,3-}$	62.7580	0.5	-3.5
$sp_{2,3+}$	63.6575	8.3	-2.53
$sp_{2,4-}$	64.1350	0.3	-3.2
$sp_{2,4+}$	64.4655	3.4	-2.58
$sp_{2,5-}$	64.6570	<0.1	-3.2
$sp_{2,5+}$	64.8200	1.8	-2.54
$sp_{2,6+}$	65.000	1.0	—
$sp_{2,7+}$	65.1100	0.7	—

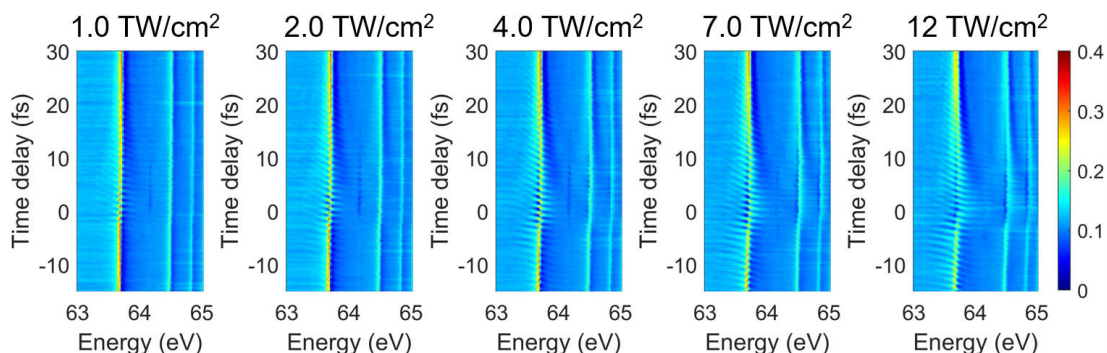


图 6-9 靶气室气压为 100 mbar 时，不同脉冲强度下 $sp_{2,4-}$ 共振能量附近瞬态吸收光谱形貌。

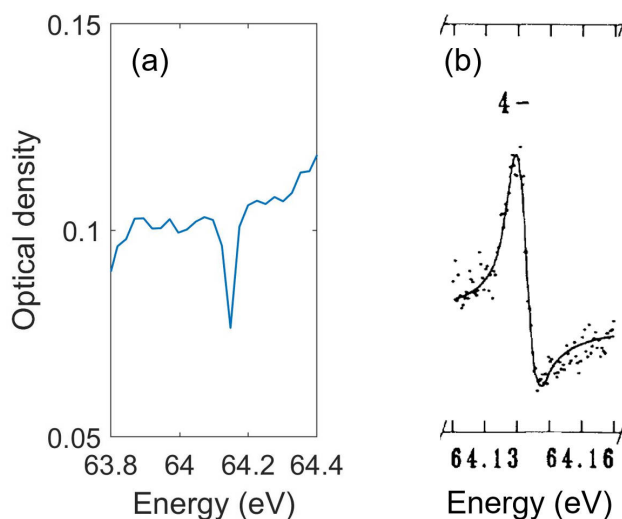


图 6-10 $sp_{2,4-}$ 吸收线型。(a) 本工作中 VIS 脉冲存在时测量结果。(b) 同步辐射测量的自然线型^[166]

表 6-1 展示了 He 原子双激发态能级位置，谱线宽度 Γ 及不对称系数 q 。特别地，图 6-8(b) 中 $sp_{2,4-}$ 态在十几飞秒时间尺度上的信号增强与 $2s2p$ 态约 17 fs 的能级寿命匹配，两能级可通过双光子跃迁耦合，该能级差对应的双光子跃迁中心光子能量约为 2 eV (622 nm)，在 VIS 频谱范围内（参见图 6-4）。此机制还可以解释 $sp_{2,3-}$ 态光谱信号无明显增强的原因，因为其对应的双光子跃迁中心光子能量为 1.3 eV (950 nm)，在 VIS 频谱边缘。

为了深入研究 $sp_{2,4-}$ 态动力学演化行为，我们开展了不同 VIS 脉冲强度下的瞬态吸收测量，图 6-9 展示了靶气压为 100 mbar 时， $sp_{2,4-}$ 共振能量附近的测量结果，其显示出三个主要特征：首先， $sp_{2,4-}$ 光谱信号对激光强度展现了明显依赖。随脉冲强度的逐渐增加，其光谱信号起初逐渐增强，而后随强度的进一步提高逐渐减弱。但在所有脉冲强度下，其均呈现了随时间延迟的振荡。更加引人注

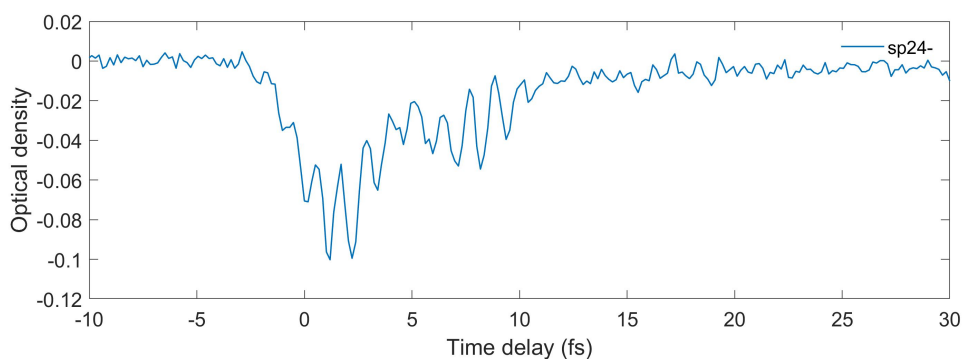


图 6-11 $sp_{2,4-}$ 共振频率处光密度随时间延迟的演化。

目的是，即便在较低的脉冲强度下，“+”系列能级还未发生明显变化时， $sp_{2,4-}$ 光谱形貌在 VIS 脉冲作用后即展现为谷，对应于反转的 Lorentzian 线型，类似于 Fano 线型中的“窗”共振 (window resonance)，不对称参数 $q \approx 0$ ，此现象在较高的脉冲强度下仍持续存在。但其自然线型远非“窗”共振，如图 6-10 所示，其为典型的关于共振中心非对称的 Fano 线型。

典型的 $sp_{2,4-}$ 共振频率处光密度随时间延迟的演化如图 6-11 所示。在负时间延迟端，其光谱信号近乎为零。当 XUV 与 VIS 逐渐重合时，其光谱幅度逐渐增大，并伴随着随时间延迟的快速振荡。在正时间延迟端，该信号幅度逐步减小，但在约 5 fs 时间延迟处出现了一拐点。该拐点出现时间与实验中 VIS 脉冲时域宽度相当，表明在两脉冲重合区域内外物理过程存在差异。

为了探究传播效应对光谱形貌的贡献，我们进一步开展了不同靶气体气压下的瞬态吸收测量。如图 6-12 所示，VIS 脉冲强度固定为 $2 \text{ TW}/\text{cm}^2$ ， $sp_{2,4-}$ 的光谱形貌随靶气压的升高并未表现出明显变化，表明其展现的动力学演化本质上近似为单原子响应，传播效应在其中贡献不大。而对于更广为人知的 $2s2p$ 共振，其光谱

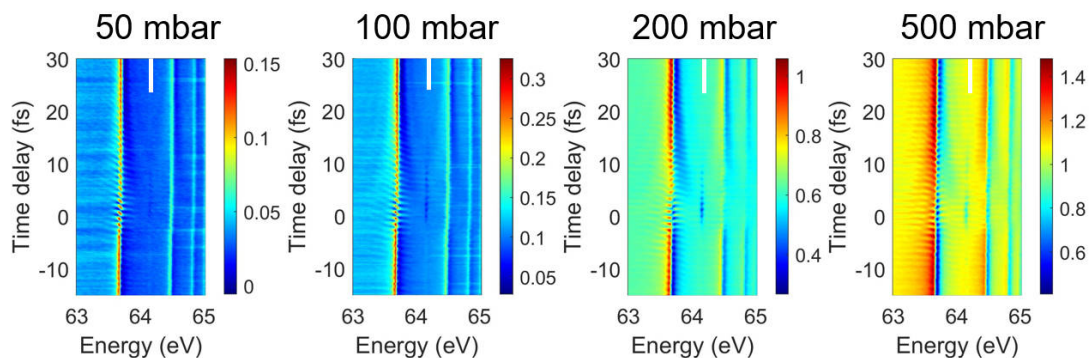


图 6-12 VIS 脉冲强度固定为 $2 \text{ TW}/\text{cm}^2$ ， $sp_{2,4-}$ 共振能量附近阿秒瞬态吸收光谱随靶气压的演化。

形貌呈现显著变化，如图 6-13 所示。随靶气压的逐渐升高，其光谱轮廓逐渐展宽，线型由清晰的 Fano 线型变得愈加复杂，并伴随着峰位中心子峰的出现，该现象与之前研究^[93,94]及本文前述研究结果类似。而对于远离峰位中心的背景吸收，其近乎随靶气压的升高而线性增强。光谱演化规律总体展现为共振能量附近的非线性吸收，以及线性的背景吸收。

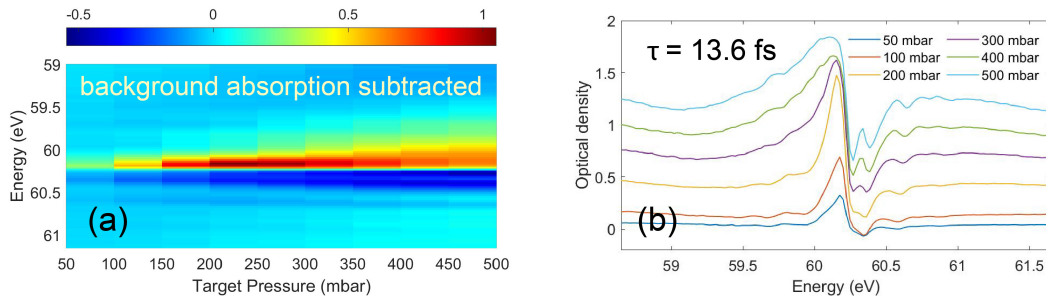


图 6-13 VIS 脉冲强度固定为 2 TW/cm^2 ，两脉冲间实验延迟为 13.6 fs 时， $2s2p$ 光谱形貌随靶气压的演化。

为了尝试揭示 $sp_{2,4-}$ 独特的动力学演化背后的物理机制，我们开展了与 2.2 节类似的单原子响应近似下的数值模拟，能级结构及在外场下的耦合示意图见图 6-14(a)。在模拟中，与 $sp_{2,4-}$ 态相关的能级及跃迁参数可调，其余参数与 2.2 节中使用的一致。图 6-14(a) 展示了一典型的参数选择下计算结果，其中 $sp_{2,4-}$ 能级吸收信号在正时间延迟端得到了增强，并展现了随时间延迟变化的振荡，但与实验结果对比仍存在一定差异，表明所考虑的物理过程是不完全的。对其背后物理机制的完全理解，还有待进一步研究。

在下一步工作中，我们拟考虑 VIS 光场作用下自电离态与连续态间的耦合，以尝试重现实验中的光谱演化规律。此外，我们也正与理论学者合作，通过数值

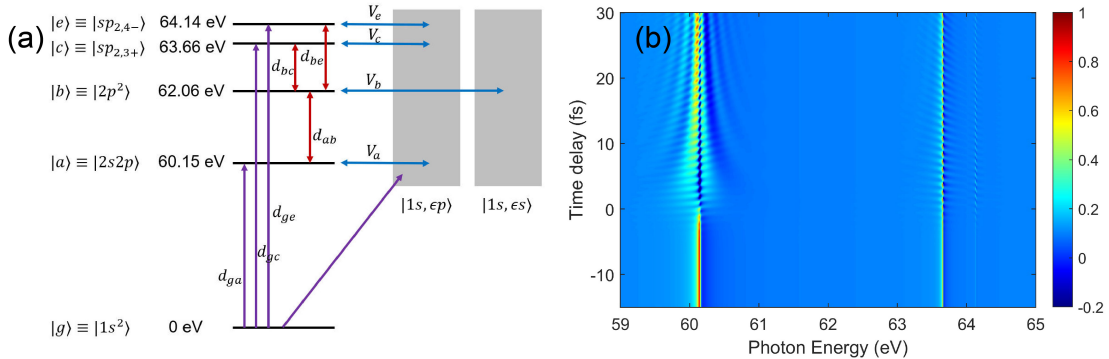


图 6-14 (a) 数值计算中能级结构及耦合方式示意图。(b) VIS 时域宽度为 5 fs ，中心波长为 670 nm ，峰值功率为 2 TW/cm^2 时计算所得瞬态吸收光谱。

求解 Schrödinger 方程，并在势场中精确考虑两电子间的库仑相互作用，图 6-15 展示了不同 IR 脉冲中心波长下的 *ab initio* 数值计算结果，从中可分辨出一些“-”系列能级的与实验结果类似的特征信号，我们也正在借助这些结果，对该物理过程开展深入分析研究。在低原子密度下的实验结果得以定性理解后，再进一步考虑脉冲在介质中的传播以模拟光谱形貌对原子密度的依赖。

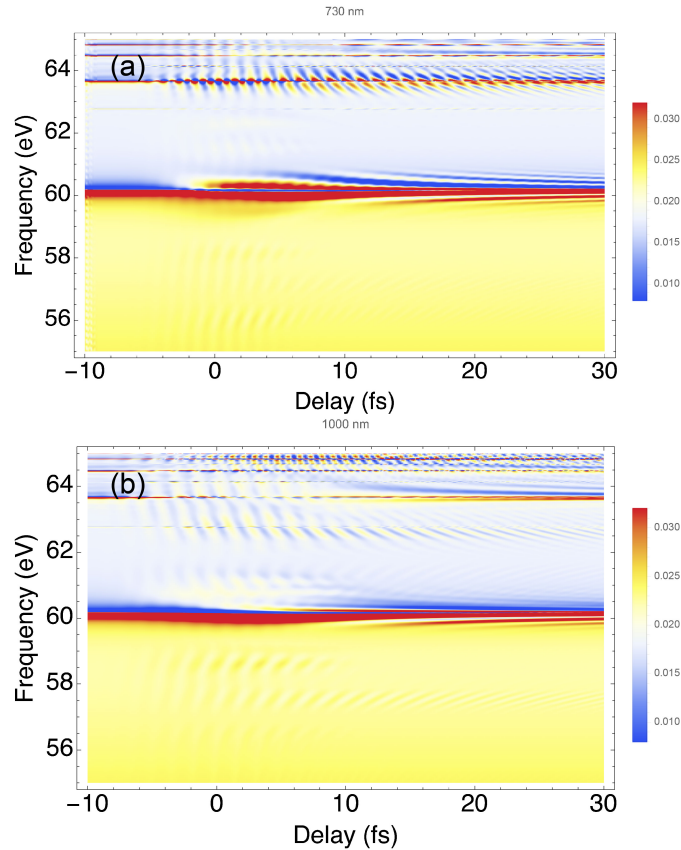


图 6-15 *ab initio* TDSE 计算结果。IR 脉冲峰值功率为 3.5 TW/cm^2 ，中心波长和脉冲宽度分别为 (a) 730 nm，7 fs 和 (b) 1000 nm，10 fs。

6.5 小结

本章开展了 He 原子双激发态的阿秒瞬态吸收测量，发现了 $sp_{2,4-}$ 态在 VIS 脉冲作用下光谱信号的增强，并展现出与 $sp_{2,n+}$ 系列能级截然不同的动力学演化行为。进一步探究了其对 VIS 脉冲强度的依赖，并揭示了传播效应对不同能级光谱形貌的贡献。通过对测量结果开展深入理论分析，我们期待能更好地理解电子关联效应。

第七章 总结与展望

7.1 全文总结

基于飞秒和阿秒激光脉冲开展的瞬态吸收光谱技术为探索微观超快动力学过程提供了有效手段。本文聚焦于该技术框架下，超短激光脉冲与原子气体介质间的相互作用，主要研究内容如下：

1. 开展了 Rb 原子蒸气飞秒静态及瞬态吸收测量，通过对比不同脉冲强度及原子密度下的吸收线型，揭示了弱场激发及单原子响应近似的局限性，并结合理论计算研究了 V 型三能级体系中相干在线型调控中的作用。

2. 模拟了二能级体系在单束强场极紫外激光脉冲作用下的动力学演化，并通过非微扰的解析模型解释了吸收线型对驱动激光脉冲参数的依赖，揭示了目前常用的三种用于模拟瞬态吸收线型变化模型的不适用性。

3. 借助阿秒瞬态吸收及时域选通技术，模拟了 Lorentzian 及 Fano 线型在宏观介质中的建立，并在理论上提出并验证了一种操纵宏观介质共振吸收特性的普适方案。证实了通过在时域上裁剪激发脉冲在传播过程中形成的后沿，从而改变其与主脉冲间的干涉结果，能在特定条件下实现介质对入射光场的完美共振吸收。

4. 开展了 He 原子双激发态 $sp_{2,n-}$ 的时间分辨测量，对比了其相较于 $sp_{2,n+}$ 态不同的动力学演化，其物理机制有待进一步的理论研究，并揭示了传播效应在在线型调控中的作用。

7.2 工作展望

在第七章的研究工作中，我们已在实验上清晰观测到在电子关联效应作用下 He 原子两类自电离态截然不同的动力学演化规律，但初步开展的少能级体系数值模拟与实验结果间仍有一定差距，背后的物理机制尚不清晰，对该研究深入的理论分析是下一步工作的重点。此外，在实验上仅观测到了 $sp_{2,4-}$ 态明显的光谱信号增强，通过提高光谱能量分辨，增加测量时间以获得更高信噪比，改变飞秒脉冲中心波长以检验其物理机制是否适用于其它 $sp_{2,n-}$ 系列能级具有重要价值。

在以上的理论分析中，脉冲均采用规则的时域包络形状（ \cos^2 或高斯形）。然而在实验中，由于不充分的色散补偿，以及在高次谐波产生等过程中受到的光谱调制，脉冲将展现出复杂的时域形貌，还可能包含一定的预及后脉冲。在理论和实验上研究其对瞬态吸收光谱的影响，以及探索从吸收线型的变化中提取相应

时域脉冲信息，有助于更好地理解激光与物质的相互作用。

本论文的研究工作主要关注于原子体系，而超快物理的研究已从简单原子、小分子体系拓展至了大分子、固体等复杂系统。此外，自由电子激光使得极紫外、X 射线波段的非线性光学研究成为了可能。在后续的工作中，我们还将结合理论与实验探究实际情形下的介质完美共振吸收方案。同时，结合阿秒瞬态吸收及阿秒条纹技术，原位反演出与介质相互作用的脉冲时域信息，并精确确定瞬态吸收中的时间延迟零点，以开展阿秒时间精度的超快动力学过程研究，可用于标定如 Autler-Towns splitting 及 light-induced states 等过程的建立时间。除此之外，尝试拓宽现有的研究方向，开展小分子体系在超快时间尺度上的电离解离动力学研究，为实现激光对化学反应过程的控制奠定基础。同时，积极参与自由电子激光平台上的实验测量，积累相关研究经验。

人类对微观世界的认知不断完善和深入，但仍有许多基础且有趣的问题悬而未决，本人也将保持对未知的热情和求知的激情，去探索求真。

附录 A 阿秒极紫外脉冲驱动光源

A.1 飞秒激光系统

阿秒瞬态吸收实验中所使用的飞秒脉冲由 Femtolasers 公司（后被 Spectra-Physics 公司收购）生产的商用激光系统（FEMTOPOWER™ HE/HR CEP4）提供。图 A-1 展示了其结构示意图，主要由两个模块组成。典型的输出参数为：脉冲宽度 20 fs，单脉冲能量 3 mJ，中心波长 780 nm，重复频率 3 kHz。

第一个模块由振荡器 (rainbow™) 及 CEP 稳定装置 (CEP4) 组成。振荡器核心为锁模光学腔，增益介质为 Ti:Sapphire，由波长为 532 nm，功率为 3.5 W 的泵浦激光 (Millenia, Spectra-Physics) 泵浦。振荡器输出重复频率为 75 MHz，单脉冲能量为 3.5 nJ，光谱宽度为一倍频程的亚 10 fs 脉冲。振荡器的输出脉冲后续被送入 CEP4 模块中，以实现其载波包络相位稳定。在该模块中，激光聚焦至周期极化铌酸锂 (Periodically Poled Lithium Niobate, PPLN) 晶体中产生光谱边缘部分高低频成分间的差频信号，脉冲串在频域的载波包络偏移 (Carrier-Envelope Offset, CEO) 频率 (f_{CEO}) 通过测量其与基频光谱中的干涉信号得到。脉冲 CEP 通过前馈法 (feed-forward scheme) 稳定；以 f_{CEO} 作为声光频率移动器 (Acousto-Optic Frequency Shifter, AOFS) 的驱动频率，其 -1 阶的衍射光束 f_{CEO} ，对应于 CEP 稳定的脉冲串。由于 AOFS 驱动频率范围较小，局限于几个 MHz，为了避免超出其工作范围，实现 CEP 长时间的稳定，振荡器中还具备反馈功能。Ti:Sapphire 安装架上的加热元件及温度传感器与 CEP4 控制单元相连，对 f_{CEO} 的控制可通过调节共振腔内 Ti:Sapphire 的温度实现。

CEP4 的输出光束单脉冲能量较低，无法满足实验开展需要。其被送入后续放大器模块，作为其种子源进一步放大。种子脉冲在该系统中共经过 10 次 Ti:Sapphire 增益介质，为 10 通放大器，图 A-2 展示了其结构示意图。放大器基于啁啾脉冲放大原理设计，入射脉冲先经过一组熔融石英片以引入正群延迟色散，在时域上展宽至皮秒量级。在共振腔中经过四次放大后，脉冲被导入 Pockels 盒及后续声光调制器 DAZZLER (Fastlite)。Pockels 盒不加电压时，输出脉冲的偏振不受影响。外加 10 ns 左右的高压后，在内部电致双折射晶体的作

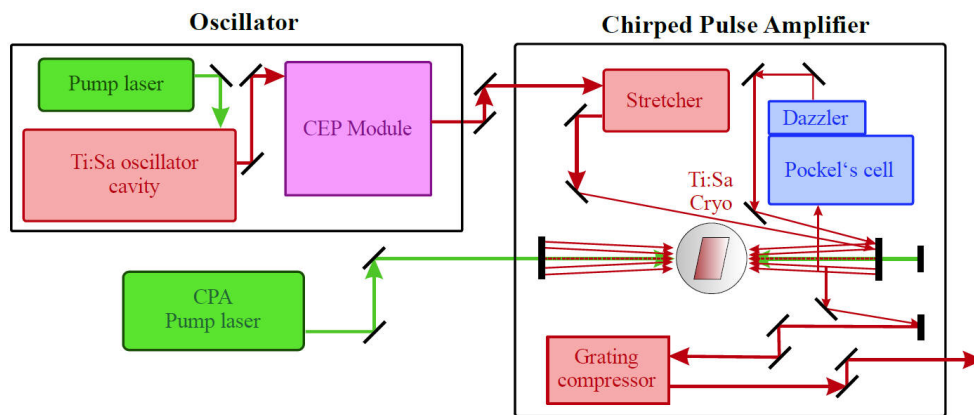


图 A-1 飞秒激光系统结构示意图^[167]。

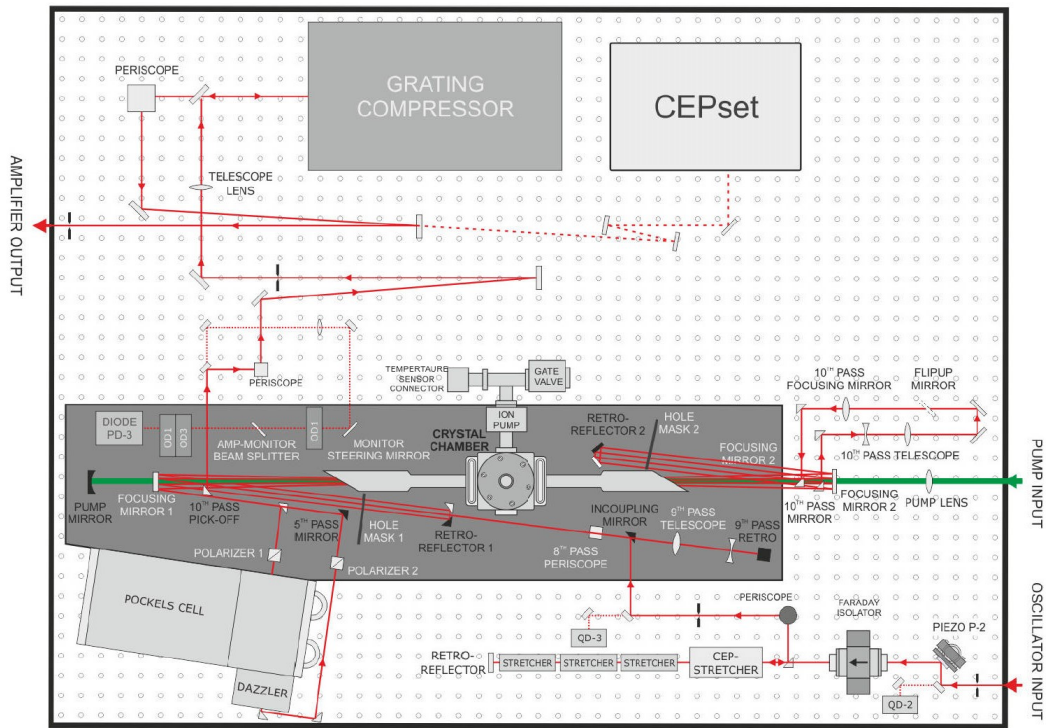


图 A-2 十通放大器结构示意图。

用下，由于 Pockels 效应（又称线性电光效应），输出脉冲变为 s 偏振。结合后续的偏振片，其可实现从 MHz 脉冲串中挑选出增益峰值附近单个脉冲在放大器中继续放大，脉冲重复频率降为 3 kHz。DAZZLER 用于补偿脉冲三阶和四阶色散，同时对光谱幅度整形以减弱放大器内的增益窄化 (gain narrowing) 效应。预压缩的脉冲在腔内后续再经过 6 次放大，单脉冲能量达到 3.5 mJ 量级，时域宽度仍在皮秒量级。最后，脉冲通过光栅压缩器以引入负群延迟色散，时域脉宽被压缩至 20 fs。高功率纳秒激光 (DM-50, Photonics Industries) 为放大器内 Ti:Sapphire 增益介质提供外部泵浦源，泵浦脉冲中心波长为 527 nm，功率为 50 W，重复频率为 3 kHz。Ti:Sapphire 被置于真空靶室内 ($P \sim 10^{-7}$ mbar)，低温冷却至 163 K，以减弱热透镜效应 (thermal lensing)。由于放大器放大效率极度依赖于光束指向，系统中安装了光束稳定器，以补偿因实验室温度、湿度等的波动对光束空间位置和指向的影响。

对长脉宽脉冲，其包络中包含多个电场振荡周期，相邻周期间电场强度相差不大；而对于少周期飞秒激光脉冲，CEP 会明显改变包络内电场分布，进而影响后续与介质的相互作用，因而对其锁定十分重要，这是在实验上产生孤立阿秒脉冲的重要条件之一。放大器的部分输出被送入 CEPset™ 装置中，用于测量其输出脉冲的 CEP 并实现其慢漂补偿。该装置基于 f-2f 干涉仪设计，其工作原理如图 A-3 所示。入射脉冲经过光阑 (1)，可变密度衰减片 (2)，通过聚焦镜 (4) 聚焦到宝石片 (5) 上，引起光谱展宽至一倍频程。后续脉冲被聚焦镜 (6) 聚焦后，送入 BBO 晶体 (8) 中，实现 1064 nm 波长附近倍频，导致 532 nm 处的光谱干涉。极化分束器 (14) 用于匹配宝石片产生的超倍频程光谱与其二次谐波的强度，以优化干涉条纹衬比度。反射镜 (12) 可用于优化光束与光谱仪间的耦合。通过比较 CEP 测量值及预设值，通过电子学元件反馈信号控制展宽器中玻璃片的插入量（色散），即可对 CEP 偏移量进行补

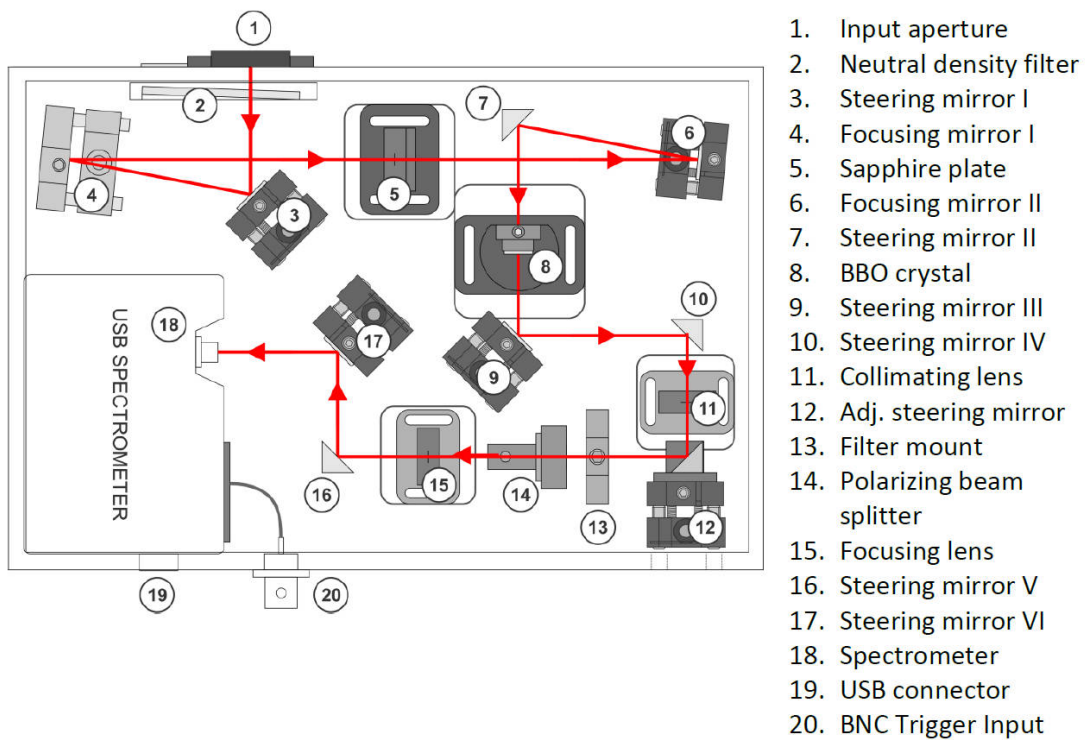


图 A-3 CEPset™ 原理示意图，其核心为 f-2f 干涉仪。

偿。在该装置的控制下，放大器输出脉冲的 CEP 稳定性约为 250 mrad。

A.2 中空光纤及啁啾镜

由于放大过程中的增益窄化效应，振荡器数百纳米宽度的输出脉冲经放大器放大后光谱仅剩几十纳米，其傅里叶变换极限仍为多周期脉冲。对已接近傅里叶变换极限的脉冲，无法通过色散补偿进一步压缩脉冲宽度。根据傅里叶带宽定理，为了在时域上获得更短的脉冲，需首先在频域上将其光谱展宽。1996年，M. Nisoli 等人采用充有惰性气体的中空光纤展宽，再经过后续的色散补偿，将高功率飞秒激光脉冲拓展到了少周期区域^[168]。这一技术在超快光学领域已得到广泛应用，是目前比较成熟的少周期飞秒脉冲产生手段。在该方案下，若采用传统的静态充气，高强度脉冲在介质中的激光成丝将导致一部分脉冲能量的损失，并损坏光纤材料，影响光学模式的耦合。为提高能量通过率，得到较大光谱展宽和最低阶的光学横模 (TEM₀₀)，实验室常采用差分泵浦中空光纤展宽。本实验室中采用双差分泵浦法，将光纤从中部切开再合拢，放置于真空管道内，如图 A-4 所示。真空管道分为三个隔块，在中部充入工作气体，与两端进行真空隔断，然后对入射和出射端抽真空，从而实现光纤内部气压从中间到两端呈梯度变化。该光纤由玻璃毛细管制成，长 1.5 m，内径为 310 μm，固定于一金属轨道上以防止其弯曲，避免激光能量的损失和光纤材料的损坏。真空管道两端为以 Brewster 角安装的玻璃窗，光束的焦点位置可通过调节放置在放大器内的棱镜在光路中的位置，散光可通过调节其倾角补偿。

该双差分泵浦法能实现光谱展宽至一个光学倍频程，同时拥有较高的透射效率。为了提

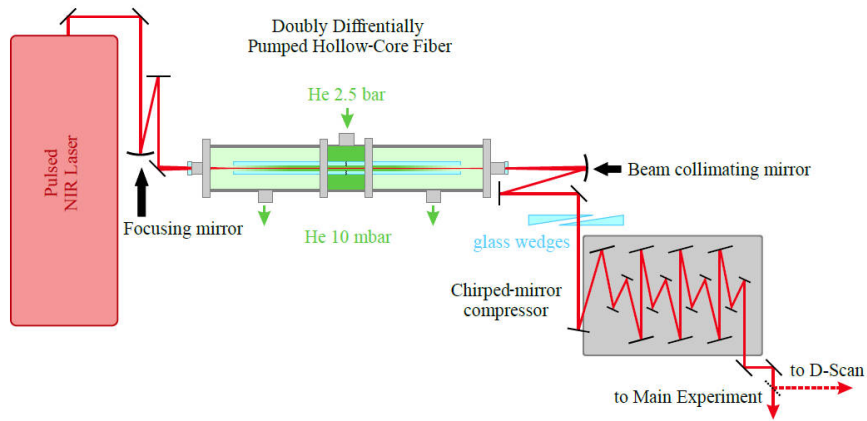
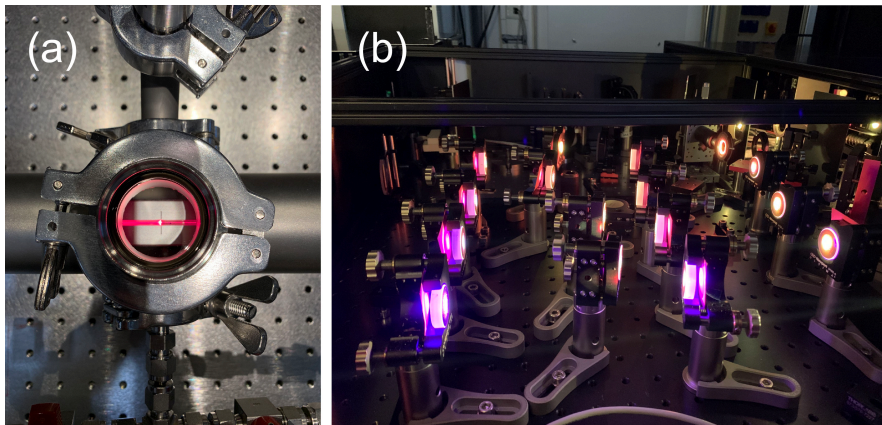
图 A-4 中空光纤脉冲压缩实验装置^[167]

图 A-5 (a) 中空光纤中部切口图，中央白色亮光来源于光束在切口处的散射。(b) 啁啾镜组工作实物图。由于该啁啾镜工作波长范围有限，透射的蓝紫光损耗了有效利用的光谱范围。未来替换为更宽带的啁啾镜组可实现对脉冲时域宽度的进一步压缩。

高能量通过率，光纤内的工作气体选择为 He 气，其拥有较高的电离势，不易发生电离。典型的工作气压为管道中部 2 bar，两端 2 mbar。通过提高工作气压，可实现更大的脉冲展宽，但同时也会导致能量通过率的降低。其次，工作气体引入的折射率变化会导致焦点的移动，影响光学模式的耦合，且输出脉冲的脉宽需同后续啁啾镜的工作波长匹配，以实现有效的脉冲压缩。在实际操作中，需要在工作气压与装置空间校准间做折中，以同时实现较宽的激光频谱，较高的输出功率，较好的光学模式。

由于透过 Brewster 窗和在中空光纤工作气体中传播所引入的色散，以及自相位调制过程的影响，输出的激光并非傅里叶变换极限脉冲。脉冲后续的色散补偿主要通过 7 对宽带啁啾镜 (chirped mirror) (PC70, Ultrafast Innovations) 来实现，图 A-5(b) 展示了工作实物图。啁啾镜本质为表面镀有多层介质膜的反射镜，不同层数的介质膜反射单宽不同。脉冲不同波长成分在啁啾镜中的穿透深度不同，其经历的有效光程不同，从而实现了对光脉冲的色散补偿。图 A-6 展示了啁啾镜群延迟色散及反射率随波长变化曲线。由于啁啾镜组提供的色散补偿量固定，为了细调光路中的色散，装置中安装了一对光楔，其在光路中的插入量连续可调。

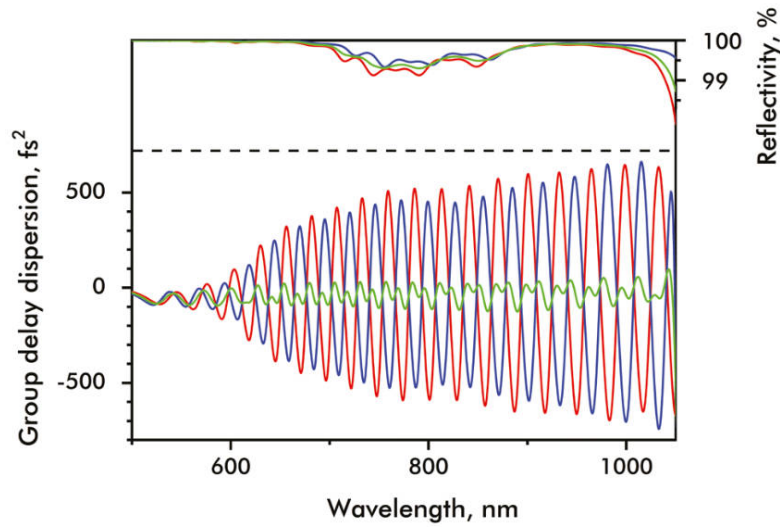


图 A-6 不同波长下的啁啾镜群延迟色散及反射率，图源 Ultrafast Innovations。由于群延迟色散不可避免地存在随波长的振荡，实验上利用不同入射角下不同的色散特性（红线：5°；蓝线：19°），成对使用以得到较为平整的色散曲线，如图中绿线所示。

该光楔对脉冲色散的连续调节还可同时用于后续的脉冲表征，以及对阿秒瞬态吸收束流中高次谐波的优化。

A.3 脉冲表征

实现对超短激光脉冲时域精确表征的意义是多元的，既可指导实验测量的开展、定量分析实验结果、实现对超快动力学过程的控制，还可结合计算结果反过来验证理论模型的适用性。对于纳秒光脉冲，其时域形状在实验上可通过光电二极管直接测量。但由于电子学原件的极限响应时间在皮秒量级，无法用于飞秒激光脉冲宽度的直接测量。

常用的飞秒脉冲表征方法有：自相关法 (autocorrelation)（包括电场自相关、强度自相关及干涉自相关）^[169]，频率分辨光开关法 (Frequency Resolved Optical Gating, FROG)^[170]，自参考光谱相干电场重建法 (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction, SPIDER)^[171]，以及多光子脉冲内干涉相位扫描 (Multiphoton Intrapulse Interference Phase Scan, MIIPS)^[172-175]。由于光路简单、适配与采用啁啾镜及光楔对的脉冲压缩装置，以及在宽频谱的少周期脉冲表征上的优势，该实验系统中采用色散扫描法 (Dispersion-scan, D-scan)^[176,177]。在 D-scan 装置中，通过控制光楔在光路中的插入量，我们扫描脉冲的色散 (Group Delay Dispersion, GDD)。BBO 晶体产生的二次谐波 (Second Harmonic Generation, SHG) 信号通过一高分辨光纤光谱仪 (HR4000+, Ocean Optics) 收集。

不同光楔插入光路深度 z 下，SHG 信号强度正比于

$$S(\omega, z) = \left| \int \left[\int \tilde{F}(\Omega) e^{izk(\Omega)} e^{i\Omega t} d\Omega \right]^2 e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (\text{A-1})$$

其中 $\tilde{F}(\Omega)$ 为基频脉冲的频域电场， $k(\Omega)$ 为波数 (wavenumber, $k = 2\pi/\lambda = \Omega/c$)。通过测量基频脉冲的光谱，以及 SHG 光谱随 z 变化的径迹，脉冲时频域信息可通过式 (A-1) 迭代反

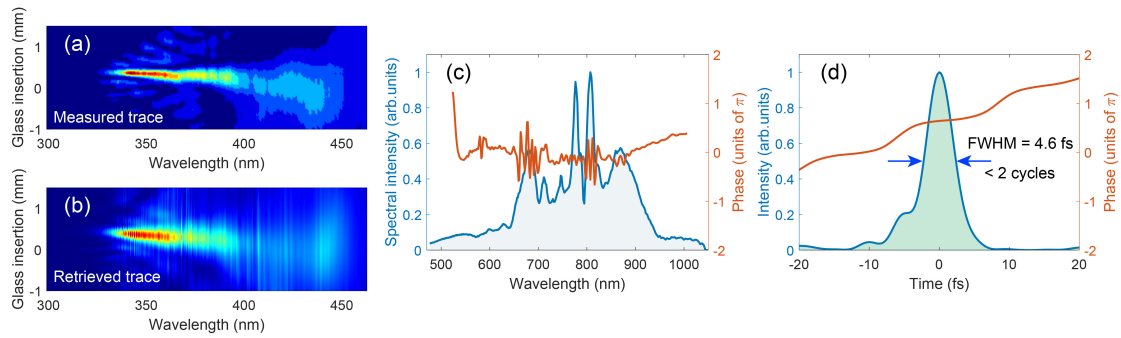


图 A-7 少周期飞秒激光脉冲表征。(a) 实验测量及 (b) 重建的 D-scan 径迹。光楔最佳插入深度下 (c) 频域相位及光谱、(d) 时域相位及强度包络。

演，直到将实验测得的径迹很好重现，如图 A-7 所示。重建结果表明，最佳光楔插入下脉冲时域半高宽度 (FWHM) 仅为 4.6 fs，短于两个频域中心波长对应的光学振荡周期 (725 nm, $T_L \approx 2.4$ fs)。但脉冲时域并非为完美的高斯形，存在一定的预/后脉冲，其来源于未补偿的更高阶色散。对该部分色散的补偿能进一步将脉冲压缩至傅里叶变换极限，并得到更加干净规则的时域形状。

参考文献

- [1] McClung F J, Hellwarth R W. Giant optical pulsations from ruby[J]. *Appl. Opt.*, 1962, 1(S1):103--105.
- [2] Hargrove L E, Fork R L, Pollack M A. Locking of he-ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation[J]. *Applied Physics Letters*, 1964, 5(1):4--5.
- [3] Shank C V, Ippen E P. Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser[J]. *Applied Physics Letters*, 1974, 24(8):373--375.
- [4] Fork R L, Greene B I, Shank C V. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking[J]. *Applied Physics Letters*, 1981, 38(9):671--672.
- [5] Fork R L, Cruz C H B, Becker P C, et al. Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation[J]. *Opt. Lett.*, 1987, 12(7):483--485.
- [6] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. *Optics Communications*, 1985, 56(3):219--221.
- [7] Hassan M T, Luu T T, Moulet A, et al. Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons[J]. *Nature*, 2016, 530(7588):66--70.
- [8] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987, 4(4):595--601.
- [9] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1988, 21(3):L31.
- [10] Farkas G, Tóth C. Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases[J]. *Physics Letters A*, 1992, 168(5):447--450.
- [11] Harris S, Macklin J, Hänsch T. Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation[J]. *Optics Communications*, 1993, 100(5):487--490.
- [12] Kohler M, Pfeifer T, Hatsagortsyan K, et al. Chapter 4 - frontiers of atomic high-harmonic generation[C]. In: Berman P, Arimondo E, Lin C, (eds.). *Proceedings of Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*. Academic Press, 2012: 159--208.
- [13] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71:1994--1997.
- [14] Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 70:1599--1602.
- [15] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields[J]. *Phys. Rev. A*, 1994, 49:2117--2132.
- [16] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses[J]. *Opt. Lett.*, 1994, 19(22):1870--1872.
- [17] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1992, 68:3535--3538.

- [18] Corkum P á, Krausz F. Attosecond science[J]. *Nature physics*, 2007, 3(6):381--387.
- [19] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. *Science*, 2012, 336(6086):1287--1291.
- [20] Chang Z, Corkum P B, Leone S R. Attosecond optics and technology: progress to date and future prospects[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2016, 33(6):1081--1097.
- [21] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology[J]. *Nature*, 2001, 414(6863):509--513.
- [22] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics[J]. *Science*, 2008, 320(5883):1614--1617.
- [23] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder[J]. *Nature*, 2004, 427(6977):817--821.
- [24] Pfeifer T, Jullien A, Abel M J, et al. Generating coherent broadband continuum soft-x-ray radiation by attosecond ionization gating[J]. *Opt. Express*, 2007, 15(25):17120--17128.
- [25] Jullien A, Pfeifer T, Abel M J, et al. Ionization phase-match gating for wavelength-tunable isolated attosecond pulse generation[J]. *Applied Physics B*, 2008, 93(2):433--442.
- [26] Abel M J, Pfeifer T, Nagel P M, et al. Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission[J]. *Chemical Physics*, 2009, 366(1):9--14. *Attosecond Molecular Dynamics*.
- [27] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(12):875--879.
- [28] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314(5798):443--446.
- [29] Sola I, Mével E, Elouga L, et al. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating[J]. *Nature physics*, 2006, 2(5):319--322.
- [30] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, et al. Double optical gating of high-order harmonic generation with carrier-envelope phase stabilized lasers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 100:103906.
- [31] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2009, 103:183901.
- [32] Mashiko H, Bell M J, Beck A R, et al. Tunable frequency-controlled isolated attosecond pulses characterized by either 750 nm or 400 nm wavelength streak fields[J]. *Opt. Express*, 2010, 18(25):25887--25895.
- [33] Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch[J]. *Opt. Lett.*, 2012, 37(18):3891--3893.
- [34] Heyl C M, Bengtsson S N, Carlström S, et al. Noncollinear optical gating[J]. *New Journal of Physics*, 2014, 16(5):052001.
- [35] Louisy M, Arnold C L, Miranda M, et al. Gating attosecond pulses in a noncollinear geometry[J]. *Optica*, 2015, 2(6):563--566.

- [36] Vincenti H, Quéré F. Attosecond lighthouses: How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 108:113904.
- [37] Kim K T, Zhang C, Ruchon T, et al. Photonic streaking of attosecond pulse trains[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(8):651--656.
- [38] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2009, 81:163--234.
- [39] Shan B, Ghimire S, Chang Z. Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating[J]. *Journal of Modern Optics*, 2005, 52(2-3):277--283.
- [40] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-x-ray pulses generated by a passively cep-stable mid-infrared driver[J]. *Opt. Express*, 2017, 25(22):27506--27518.
- [41] Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation[J]. *Science*, 2001, 292(5522):1689--1692.
- [42] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal[J]. *Nature physics*, 2011, 7(2):138--141.
- [43] Luu T T, Yin Z, Jain A, et al. Extreme-ultraviolet high-harmonic generation in liquids[J]. *Nature communications*, 2018, 9(1):1--10.
- [44] Zhan M J, Ye P, Teng H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV[J]. *Chinese Physics Letters*, 2013, 30(9):093201.
- [45] Yang Z, Cao W, Chen X, et al. All-optical frequency-resolved optical gating for isolated attosecond pulse reconstruction[J]. *Opt. Lett.*, 2020, 45(2):567--570.
- [46] Wang X, Wang L, Xiao F, et al. Generation of 88 as isolated attosecond pulses with double optical gating[J]. *Chinese Physics Letters*, 2020, 37(2):023201.
- [47] 王向林, 徐鹏, 李捷, et al. 利用自研阿秒条纹相机测得 159 as 孤立阿秒脉冲 [J]. *中国激光*, 2020, 47(4):0415002.
- [48] Zeng Z, Cheng Y, Song X, et al. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 98:203901.
- [49] Ye P, He X, Teng H, et al. Full quantum trajectories resolved high-order harmonic generation[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113:073601.
- [50] Li L, Lan P, He L, et al. Scaling law of high harmonic generation in the framework of photon channels[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120:223203.
- [51] Li L, Lan P, Zhu X, et al. Huygens-fresnel picture for high harmonic generation in solids[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 127:223201.
- [52] Fang Y, Lu S, Liu Y. Controlling photon transverse orbital angular momentum in high harmonic generation[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 127:273901.
- [53] Gong X, Lin C, He F, et al. Energy-resolved ultrashort delays of photoelectron emission clocked by orthogonal two-color laser fields[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2017, 118:143203.
- [54] Han M, Ge P, Wang J, et al. Complete characterization of sub-coulomb-barrier tunnelling with phase-of-phase attoclock[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(10):765--771.

- [55] Yu M, Liu K, Li M, et al. Full experimental determination of tunneling time with attosecond-scale streaking method[J]. *Light: Science & Applications*, 2022, 11(1):1--6.
- [56] Wollaston W H. Xii. a method of examining refractive and dispersive powers, by prismatic reflection[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 1802, (92):365--380.
- [57] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion[J]. *Nature*, 2010, 466(7307):739.
- [58] Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105:143002.
- [59] Chini M, Zhao B, Wang H, et al. Subcycle ac stark shift of helium excited states probed with isolated attosecond pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, 109:073601.
- [60] Ott C, Kaldun A, Raith P, et al. Lorentz meets fano in spectral line shapes: A universal phase and its laser control[J]. *Science*, 2013, 340(6133):716--720.
- [61] Ott C, Kaldun A, Argenti L, et al. Reconstruction and control of a time-dependent two-electron wave packet[J]. *Nature*, 2014, 516(7531):374.
- [62] Kaldun A, Blättermann A, Stooß V, et al. Observing the ultrafast buildup of a fano resonance in the time domain[J]. *Science*, 2016, 354(6313):738--741.
- [63] Stooß V, Cavaletto S M, Donsa S, et al. Real-time reconstruction of the strong-field-driven dipole response[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 121:173005.
- [64] Leshchenko V, Hageman S J, Cariker C, et al. Kramers--kronig relation in attosecond transient absorption spectroscopy[J]. *Optica*, 2023, 10(2):142--146.
- [65] Kobayashi Y, Chang K F, Zeng T, et al. Direct mapping of curve-crossing dynamics in ibr by attosecond transient absorption spectroscopy[J]. *Science*, 2019, 365(6448):79--83.
- [66] Timmers H, Zhu X, Li Z, et al. Disentangling conical intersection and coherent molecular dynamics in methyl bromide with attosecond transient absorption spectroscopy[J]. *Nature communications*, 2019, 10(1):1--8.
- [67] Chang K F, Reduzzi M, Wang H, et al. Revealing electronic state-switching at conical intersections in alkyl iodides by ultrafast xuv transient absorption spectroscopy[J]. *Nature communications*, 2020, 11(1):1--7.
- [68] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, et al. Time-resolved x-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source[J]. *Science*, 2017, 355(6322):264--267.
- [69] Saito N, Sannohe H, Ishii N, et al. Real-time observation of electronic, vibrational, and rotational dynamics in nitric oxide with attosecond soft x-ray pulses at 400 ev[J]. *Optica*, 2019, 6(12):1542--1546.
- [70] Peng P, Mi Y, Lytova M, et al. Coherent control of ultrafast extreme ultraviolet transient absorption[J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(1):45--51.
- [71] Krausz F, Stockman M I. Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(3):205--213.

- [72] Schultze M, Bothschafter E M, Sommer A, et al. Controlling dielectrics with the electric field of light[J]. *Nature*, 2013, 493(7430):75--78.
- [73] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C, et al. Attosecond band-gap dynamics in silicon[J]. *Science*, 2014, 346(6215):1348--1352.
- [74] Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, et al. Attosecond dynamical franz-keldysh effect in polycrystalline diamond[J]. *Science*, 2016, 353(6302):916--919.
- [75] Ott C, Aufleger L, Ding T, et al. Strong-field extreme-ultraviolet dressing of atomic double excitation[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123:163201.
- [76] Ding T, Rebholz M, Aufleger L, et al. Nonlinear coherence effects in transient-absorption ion spectroscopy with stochastic extreme-ultraviolet free-electron laser pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123:103001.
- [77] Rebholz M, Ding T, Despré V, et al. All-xuv pump-probe transient absorption spectroscopy of the structural molecular dynamics of di-iodomethane[J]. *Phys. Rev. X*, 2021, 11:031001.
- [78] Santra R, Yakovlev V S, Pfeifer T, et al. Theory of attosecond transient absorption spectroscopy of strong-field-generated ions[J]. *Phys. Rev. A*, 2011, 83:033405.
- [79] Magunia A, Aufleger L, Ding T, et al. Bound-state electron dynamics driven by near-resonantly detuned intense and ultrashort pulsed xuv fields[J]. *Applied Sciences*, 2020, 10(18).
- [80] Aufleger L, Friebel P, Rupprecht P, et al. Pulse length effects on autoionizing states under the influence of intense sase xuv fields[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2020, 53(23):234002.
- [81] Aufleger L, Friebel P, Rupprecht P, et al. Line-shape broadening of an autoionizing state in helium at high xuv intensity[J]. *New Journal of Physics*, 2022, 24(1):013014.
- [82] Chu W C, Lin C D. Absorption and emission of single attosecond light pulses in an autoionizing gaseous medium dressed by a time-delayed control field[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 87:013415.
- [83] Pabst S, Sytcheva A, Moulet A, et al. Theory of attosecond transient-absorption spectroscopy of krypton for overlapping pump and probe pulses[J]. *Phys. Rev. A*, 2012, 86:063411.
- [84] Kaldun A, Ott C, Blättermann A, et al. Extracting phase and amplitude modifications of laser-coupled fano resonances[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 112:103001.
- [85] Mashiko H, Yamaguchi T, Oguri K, et al. Characterizing inner-shell with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction[J]. *Nature communications*, 2014, 5:5599.
- [86] Leone S R, McCurdy C W, Burgdörfer J, et al. What will it take to observe processes in real time?[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(3):162.
- [87] Ramasesha K, Leone S R, Neumark D M. Real-time probing of electron dynamics using attosecond time-resolved spectroscopy[J]. *Annual review of physical chemistry*, 2016, 67:41--63.
- [88] Sabbar M, Timmers H, Chen Y J, et al. State-resolved attosecond reversible and irreversible dynamics in strong optical fields[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(5):472.

- [89] Gaarde M B, Buth C, Tate J L, et al. Transient absorption and reshaping of ultrafast xuv light by laser-dressed helium[J]. *Phys. Rev. A*, 2011, 83:013419.
- [90] Lin C D, Chu W C. Controlling atomic line shapes[J]. *Science*, 2013, 340(6133):694--695.
- [91] Chen S, Wu M, Gaarde M B, et al. Laser-imposed phase in resonant absorption of an isolated attosecond pulse[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 88:033409.
- [92] Pfeiffer A N, Bell M J, Beck A R, et al. Alternating absorption features during attosecond-pulse propagation in a laser-controlled gaseous medium[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 88:051402.
- [93] Liao C T, Sandhu A, Camp S, et al. Beyond the single-atom response in absorption line shapes: Probing a dense, laser-dressed helium gas with attosecond pulse trains[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 114:143002.
- [94] Liao C T, Sandhu A, Camp S, et al. Attosecond transient absorption in dense gases: Exploring the interplay between resonant pulse propagation and laser-induced line-shape control[J]. *Phys. Rev. A*, 2016, 93:033405.
- [95] Liu J, Cao W, Zhang Q, et al. Pinpointing the macroscopic signatures of attosecond transient absorption in helium: Reshaped spectral splitting and persistent quantum beating[J]. *Phys. Rev. A*, 2022, 105:063515.
- [96] Steck D A. Rubidium 85 d line data[Z], revision 2.1.6, 20 September 2013. <https://steck.us/alkalidata/>.
- [97] Crisp M D. Propagation of small-area pulses of coherent light through a resonant medium[J]. *Phys. Rev. A*, 1970, 1:1604--1611.
- [98] Lamb G L. Analytical descriptions of ultrashort optical pulse propagation in a resonant medium[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 1971, 43:99--124.
- [99] Netz R, Feurer T, Roberts G, et al. Coherent population dynamics of a three-level atom in spacetime[J]. *Phys. Rev. A*, 2002, 65:043406.
- [100] Pati A P, Wahyutama I S, Pfeiffer A N. Subcycle-resolved probe retardation in strong-field pumped dielectrics[J]. *Nature communications*, 2015, 6:7746.
- [101] Nist atomic spectra database[J]. <https://physics.nist.gov/asd>.
- [102] Bayram S B, Havey M, Rosu M, et al. $5p^2P_j \rightarrow 5d^2D_{3/2}$ transition matrix elements in atomic ^{87}Rb [J]. *Phys. Rev. A*, 2000, 61:050502.
- [103] Liu Z, Cavaletto S M, Ott C, et al. Phase reconstruction of strong-field excited systems by transient-absorption spectroscopy[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2015, 115:033003.
- [104] Becquet V, Cavaletto S M. Transient-absorption phases with strong probe and pump pulses[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2018, 51(3):035501.
- [105] Blättermann A, Ott C, Kaldun A, et al. Two-dimensional spectral interpretation of time-dependent absorption near laser-coupled resonances[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2014, 47(12):124008.
- [106] Liu Z, Wang Q, Ding J, et al. Observation and quantification of the quantum dynamics of a strong-field excited multi-level system[J]. *Scientific reports*, 2017, 7:39993.

- [107] Blättermann A, Ott C, Kaldun A, et al. In situ characterization of few-cycle laser pulses in transient absorption spectroscopy[J]. *Optics letters*, 2015, 40(15):3464--3467.
- [108] Wu M, Chen S, Camp S, et al. Theory of strong-field attosecond transient absorption[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2016, 49(6):062003.
- [109] Ranka J K, Schirmer R W, Gaeta A L. Coherent spectroscopic effects in the propagation of ultrashort pulses through a two-level system[J]. *Phys. Rev. A*, 1998, 57:R36--R39.
- [110] He Y, Liu Z, Cui Z, et al. Signatures of self-modulation effects during pulse propagation in single-pulse absorption spectra[J]. *Phys. Rev. A*, 2019, 99:053418.
- [111] Lambropoulos P, Zoller P. Autoionizing states in strong laser fields[J]. *Phys. Rev. A*, 1981, 24:379--397.
- [112] Artemyev A N, Cederbaum L S, Demekhin P V. Impact of intense laser pulses on the autoionization dynamics of the $2s2p$ doubly excited state of he[J]. *Phys. Rev. A*, 2017, 96:033410.
- [113] Mouloudakis G, Lambropoulos P. Autoionizing states driven by stochastic electromagnetic fields[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2017, 51(1):01LT01.
- [114] Chen S, Bell M J, Beck A R, et al. Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium[J]. *Phys. Rev. A*, 2012, 86:063408.
- [115] Autler S H, Townes C H. Stark effect in rapidly varying fields[J]. *Phys. Rev.*, 1955, 100:703--722.
- [116] Mollow B R. Power spectrum of light scattered by two-level systems[J]. *Phys. Rev.*, 1969, 188:1969--1975.
- [117] Wu M, Chen S, Gaarde M B, et al. Time-domain perspective on autler-townes splitting in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 88:043416.
- [118] Rørstad J J, Bækhøj J E, Madsen L B. Analytic modeling of structures in attosecond transient-absorption spectra[J]. *Phys. Rev. A*, 2017, 96:013430.
- [119] Chen S, Wu M, Gaarde M B, et al. Quantum interference in attosecond transient absorption of laser-dressed helium atoms[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 87:033408.
- [120] Wu M, Chen S, Schafer K J, et al. Ultrafast time-dependent absorption in a macroscopic three-level helium gas[J]. *Phys. Rev. A*, 2013, 87:013828.
- [121] Wu X, Yang Z, Zhang S, et al. Buildup time of autler-townes splitting in attosecond transient absorption spectroscopy[J]. *Phys. Rev. A*, 2021, 103:L061102.
- [122] Sekikawa T, Ohno T, Yamazaki T, et al. Pulse compression of a high-order harmonic by compensating the atomic dipole phase[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83:2564--2567.
- [123] Ding T, Rebholz M, Aufleger L, et al. Measuring the frequency chirp of extreme-ultraviolet free-electron laser pulses by transient absorption spectroscopy[J]. *Nature communications*, 2021, 12(1):1--7.
- [124] Meshulach D, Silberberg Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse[J]. *Nature*, 1998, 396(6708):239--242.

- [125] Weiner A M. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2000, 71(5):1929--1960.
- [126] Silberberg Y. Quantum coherent control for nonlinear spectroscopy and microscopy[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2009, 60(1):277--292.
- [127] Winterfeldt C, Spielmann C, Gerber G. Colloquium: Optimal control of high-harmonic generation[J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2008, 80:117--140.
- [128] Bengtsson S, Larsen E W, Kroon D, et al. Space--time control of free induction decay in the extreme ultraviolet[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(4):252.
- [129] Sekikawa T, Ishikawa K L. Tailoring extreme-ultraviolet light[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(4):209--210.
- [130] Drescher L, Kornilov O, Witting T, et al. Extreme-ultraviolet refractive optics[J]. *Nature*, 2018, 564(7734):91--94.
- [131] Drescher L, Kornilov O, Witting T, et al. Extreme-ultraviolet spectral compression by four-wave mixing[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(4):263--266.
- [132] Prince K, Allaria E, Callegari C, et al. Coherent control with a short-wavelength free-electron laser[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(3):176--179.
- [133] Heeg K P, Kaldun A, Strohm C, et al. Coherent x-ray- optical control of nuclear excitons[J]. *Nature*, 2021, 590(7846):401--404.
- [134] Gmachl C F. Suckers for light[J]. *Nature*, 2010, 467(7311):37--39.
- [135] Chong Y D, Ge L, Cao H, et al. Coherent perfect absorbers: Time-reversed lasers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105:053901.
- [136] Wan W, Chong Y, Ge L, et al. Time-reversed lasing and interferometric control of absorption[J]. *Science*, 2011, 331(6019):889--892.
- [137] Pichler K, Kühmayer M, Böhm J, et al. Random anti-lasing through coherent perfect absorption in a disordered medium[J]. *Nature*, 2019, 567(7748):351--355.
- [138] Baranov D G, Krasnok A, Shegai T, et al. Coherent perfect absorbers: linear control of light with light[J]. *Nature Reviews Materials*, 2017, 2(12):17064.
- [139] Fano U. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts[J]. *Phys. Rev.*, 1961, 124:1866--1878.
- [140] Stooß V, Birk P, Blättermann A, et al. Strong-field-gated buildup of a rydberg series[J]. *Phys. Rev. Research*, 2020, 2:032041.
- [141] Gruson V, Barreau L, Jiménez-Galan Á, et al. Attosecond dynamics through a fano resonance: Monitoring the birth of a photoelectron[J]. *Science*, 2016, 354(6313):734--738.
- [142] Chu W C, Lin C D. Photoabsorption of attosecond xuv light pulses by two strongly laser-coupled autoionizing states[J]. *Phys. Rev. A*, 2012, 85:013409.
- [143] Keldysh L. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave[J]. *Sov. Phys. JETP*, 1965, 20(5):1307--1314.

- [144] Burnham D C, Chiao R Y. Coherent resonance fluorescence excited by short light pulses[J]. Phys. Rev., 1969, 188:667--675.
- [145] Vasilev G S, Vitanov N V. Complete population transfer by a zero-area pulse[J]. Phys. Rev. A, 2006, 73:023416.
- [146] Hamadani S M, Goldhar J, Kurnit N A, et al. Coherent optical pulse reshaping in a resonant molecular absorber[J]. Applied Physics Letters, 1974, 25(3):160--163.
- [147] Rothenberg J E, Grischkowsky D, Balant A C. Observation of the formation of the 0π pulse[J]. Phys. Rev. Lett., 1984, 53:552--555.
- [148] Matusovsky M, Vaynberg B, Rosenbluh M. 0π pulse propagation in the extreme sharp-line limit[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1996, 13(9):1994--1998.
- [149] Dudovich N, Oron D, Silberberg Y. Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions[J]. Phys. Rev. Lett., 2002, 88:123004.
- [150] Strasser D, Pfeifer T, Hom B J, et al. Coherent interaction of femtosecond extreme-uv light with he atoms[J]. Phys. Rev. A, 2006, 73:021805.
- [151] Costanzo L S, Coelho A S, Pellegrino D, et al. Zero-area single-photon pulses[J]. Phys. Rev. Lett., 2016, 116:023602.
- [152] Lipka M, Parniak M. Single-photon hologram of a zero-area pulse[J]. Phys. Rev. Lett., 2021, 127:163601.
- [153] McCall S L, Hahn E L. Self-induced transparency[J]. Phys. Rev., 1969, 183:457--485.
- [154] Allen L, Eberly J H. Optical resonance and two-level atoms[M]. Dover Publications, New York, 1987.
- [155] Shore B W. Manipulating quantum structures using laser pulses[M]. Cambridge University Press, 2011.
- [156] He Y, Liu Z, Xue N, et al. Watching the formation and reshaping of a fano resonance in a macroscopic medium[J]. Phys. Rev. A, 2021, 103:L041102.
- [157] Simpson E R, Labeye M, Camp S, et al. Probing stark-induced nonlinear phase variation with opto-optical modulation[J]. Phys. Rev. A, 2019, 100:023403.
- [158] Pfeifer T, Jiang Y, Düsterer S, et al. Partial-coherence method to model experimental free-electron laser pulse statistics[J]. Opt. Lett., 2010, 35(20):3441--3443.
- [159] Madden R P, Codling K. New autoionizing atomic energy levels in he, ne, and ar[J]. Phys. Rev. Lett., 1963, 10:516--518.
- [160] Cooper J W, Fano U, Prats F. Classification of two-electron excitation levels of helium[J]. Phys. Rev. Lett., 1963, 10:518--521.
- [161] Domke M, Remmers G, Kaindl G. Observation of the $(2p,nd)^1p^o$ double-excitation rydberg series of helium[J]. Phys. Rev. Lett., 1992, 69:1171--1174.
- [162] Stooß V, Hartmann M, Birk P, et al. Xuv-beamline for attosecond transient absorption measurements featuring a broadband common beam-path time-delay unit and in situ reference

- spectrometer for high stability and sensitivity[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2019, 90(5):053108.
- [163] Hartmann M D. Attosecond dynamics of strong-field generated ions[D]. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2021.
- [164] Samson J A R, He Z X, Yin L, et al. Precision measurements of the absolute photoionization cross sections of He[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1994, 27(5):887.
- [165] Stooß V. Strong-field spectroscopy: from absorption to time-resolved dynamics in strong fields[D]. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2018.
- [166] Domke M, Xue C, Puschmann A, et al. Extensive double-excitation states in atomic helium[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, 66:1306--1309.
- [167] Birk P. The dipole response of an ionization threshold within ultrashort and strong fields[D]. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2020.
- [168] Nisoli M, Silvestri S D, Svelto O, et al. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs[J]. *Opt. Lett.*, 1997, 22(8):522--524.
- [169] Diels J C M, Fontaine J J, McMichael I C, et al. Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy[J]. *Appl. Opt.*, 1985, 24(9):1270--1282.
- [170] Trebino R, DeLong K W, Fittinghoff D N, et al. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating[J]. *Review of Scientific Instruments*, 1997, 68(9):3277--3295.
- [171] Iaconis C, Walmsley I A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses[J]. *Opt. Lett.*, 1998, 23(10):792--794.
- [172] Lozovoy V V, Pastirk I, Dantus M. Multiphoton intrapulse interference. iv. ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation[J]. *Opt. Lett.*, 2004, 29(7):775--777.
- [173] Xu B, Gunn J M, Cruz J M D, et al. Quantitative investigation of the multiphoton intrapulse interference phase scan method for simultaneous phase measurement and compensation of femtosecond laser pulses[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2006, 23(4):750--759.
- [174] Lozovoy V V, Xu B, Coello Y, et al. Direct measurement of spectral phase for ultrashort laser pulses[J]. *Opt. Express*, 2008, 16(2):592--597.
- [175] Coello Y, Lozovoy V V, Gunaratne T C, et al. Interference without an interferometer: a different approach to measuring, compressing, and shaping ultrashort laser pulses[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2008, 25(6):A140--A150.
- [176] Miranda M, Fordell T, Arnold C, et al. Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirrors and glass wedges[J]. *Opt. Express*, 2012, 20(1):688--697.
- [177] Miranda M, Arnold C L, Fordell T, et al. Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique[J]. *Opt. Express*, 2012, 20(17):18732--18743.

在学期间的研究成果

一、发表论文

1. **Yu He**, Zuoye Liu, Christian Ott, Adrian N. Pfeiffer, Shaohua Sun, Mette B. Gaarde, Thomas Pfeifer, and Bitao Hu, Resonant Perfect Absorption Yielded by Zero-Area Pulses, *Physical Review Letters* 129, 273201 (2022).

2. **Yu He**, Haohan Shi, Nan Xue, Alexander Magunia, Shaohua Sun, Jingjie Ding, Bitao Hu, and Zuoye Liu, Direct manipulation of atomic excitation with intense extreme-ultraviolet laser fields, *Physical Review A* 105, 043113 (2022).

3. **Yu He**, Zuoye Liu, Nan Xue, Christian Ott, Thomas Pfeifer, Adrian N. Pfeiffer, and Bitao Hu, Watching the formation and reshaping of a Fano resonance in a macroscopic medium, *Physical Review A* 103, L041102 (2021).

4. **Yu He**, Rao Chen, Fujun Wang, Adrian N. Pfeiffer, Yuxuan Zhang, Zuwen Cui, Jingjie Ding, Zuoye Liu, and Bitao Hu, Macroscopic transient absorption in a V -type three-level system, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* (2020).

5. **Yu He**, Zuoye Liu, Zuwen Cui, Yuxuan Zhang, Adrian N. Pfeiffer, Thomas Pfeifer, Jingjie Ding, and Bitao Hu, Signatures of self-modulation effects during pulse propagation in single-pulse absorption spectra, *Physical Review A* 99, 053418 (2019).

6. Yuxuan Zhang, Zoumingyang Zhu, Yue Zheng, Yulan Wu, **Yu He**, Zuwen Cui, Bitao Hu, Pengji Ding, and Jingjie Ding, Optical gain in the P branch of N_2^+ lasing by polarization-modulated laser pulses, *Physical Review A* 103, 063110 (2021).

7. Zhenhao Wang, Guoqiang Shi, **Yu He**, Quanjun Wang, Jingjie Ding, Shaohua Sun, Zuoye Liu, and Bitao Hu, Ultrafast dynamic evolution of multilevel systems in medium-strength laser fields, *New Journal of Physics* 21, 053007 (2019).

二、主持课题

1. 甘肃省优秀研究生“创新之星”项目, 0π 脉冲诱导的完美共振吸收 (2021CXZX-015)。

2. 中央高校基本科研业务费优秀研究生创新项目, 飞秒吸收光谱中的传播效应 (lzujbky-2019-it09)。

三、荣誉奖励

甘肃省普通高校优秀毕业生 (2023)

兰州大学“优秀毕业生”(2023)

兰州大学 2023 届出彩毕业生

研究生国家奖学金 (2018, 2021)

兰州大学博士研究生一等学业奖学金 (2019, 2020)

兰州大学博士研究生二等学业奖学金 (2022)

兰州大学“三好研究生”、“优秀研究生”(2019, 2020)

兰州大学核科学与技术学院“智库榜样引领”奖学金 (2022)

致 谢

许多次独自沿着麦积山路往返与宿舍和二分部时，我都不禁憧憬毕业时的情景，行文至此，昭示着这一天的即将来临，我的学生生涯也将画上一个句号。在此，我谨向研究生期间帮助过我的人们表达由衷的谢意。

特别感谢我的导师刘作业教授，引我走进了超快物理的大门，在文献调研、实验开展、数据分析处理、文章撰写等方面给予了悉心指导，在工作和生活中都给予了我莫大的帮助。刘老师在工作上充满热情，兢兢业业，即便是在出差途中，也能及时对我们的工作进展和研究问题做出反馈，并给出建设性的意见建议，用实际行动为我们做出了表率。此外，刘老师总是鼓励我勇于尝试，抓住各种机会，从项目书到各类申请材料，都会腾出时间为我严格把关，并为我提供许多外出交流的机会。刘老师认真的工作态度和积极的生活态度始终感染着我们，老师的言传身教是我博士学业得以完成的关键。

感谢胡碧涛教授对我科研工作的督促和生活上的关心。胡老师不仅在生活上平易近人，在教学上循循善诱、风格鲜明，深受学生尊敬和喜爱，还总能在组会讨论中一针见血地提出各种问题，是我工作和学习的榜样。感谢同组的孙少华、丁鹏基、王集锦、沈洁和杜洪川老师对我研究工作和生活上的帮助。

感谢在德国马普核物理所交流期间的指导老师 **Christian Ott** 博士和 **Thomas Pfeifer** 教授。感谢你们能接纳我成为团队一员，为我提供国际领先的科研条件，资助我广泛开展交流合作。一起共事的这近一年半时间里，我总会惊叹于你们知识的深度和广度，对待科学的严谨、激情与纯粹，以及充沛的工作精力，特别是 **Thomas** 在繁重的行政任务下，仍在与我们的科研讨论中表现得游刃有余。感谢 **Christian** 定期为我用心撰写的阶段性学习评价，这也激励了我在下一阶段中扎实推进研究工作。**The story is not yet finished**，感谢你们邀请我毕业之后回组继续开展博士后工作，愿我们之后的合作更具成效，希望我能成为像你们一样能独当一面的科研工作者。

感谢美国路易斯安娜州立大学 **Mette Gaarde** 教授。**Mette** 是超快物理领域国际知名的理论物理学家，我自入瞬态吸收这行起就一直在读其课题组的文章。我感动于你在素未相识之际即耐心回复我的邮件，并有幸后续通过完美共振吸收的工作正式建立合作关系，有机会前往你课题组开展交流学习。访问期间不仅在生活上对我的关心细致入微，还在工作中鼓励我每天反馈自己的进展和想法，并耐心地和我交流讨论，为我解疑答惑，让我对理论研究和数值计算有了更多的认识。同时，我还要感谢 **Kenneth Schafer** 教授和岳仑博士，与你们的交流沟通让我

受益良多。2023年岁末年初之际短暂的路易斯安娜之旅，真是一段独特而又难忘的经历。

我还要感谢德国耶拿大学的 Adrian Pfeiffer 博士。我钦羨于你能理论实验两手抓，这也激励了我在实验工作之余开展一些理论研究。我们虽从未谋面，但你的交流合作让我收获颇丰。

感谢王贞浩师兄带我熟悉飞秒激光及瞬态吸收装置的运行使用。感谢崔祖文和张宇璇帮助我一同开展铷的飞秒静态和瞬态吸收测量，以及其它的一些实验工作。我还要感谢激光物理实验室的吴柯岩、王全军、薛山、岳生俊、伏思霖、史国强、雷建廷、吴玉兰、冯永康、王平全、薛楠、师浩涵、高健、韩胜贤、李智凡、朱邹明阳，王泽轩、赵通讯、李智凡、史迎波、杨家兴、向昱霖、郑悦、何志轩、何山、师少玺、肖超元、徐然等人对我科研和生活上的帮助，并丰富了我的业余生活。特别感谢师浩涵对我毕业论文的校对。

感谢邢若愚在我初到德国期间，帮助我在海德堡顺利安顿下来。由衷地感谢胡书源耐心地指导我开展阿秒瞬态吸收以及阿秒条纹测量，使我按期完成计划中的研究课题成为了可能。感谢 Interatto 和 X-MuSIC 课题组的金锐、张逸竹、Maximilian Hartmann、Gergana Borisova、Marc Rebholz、Carina da Costa Castanheira、Alexander Magunia、Carlo Kleine、Lina Hedewig 等团队成员对我研究工作的帮助。我还要感谢何沛伦、弓正、吕纯海、韩丽、张玮玉、高健顺、吕清正、黄稚秋等海德堡的华人朋友们，无论是平日的闲聊，还是节日的聚餐，总让我感受到异乡的温暖。与你们的交流讨论，让我看到了人生的无限可能。

特别地，我要感谢论文评阅及答辩环节的专家老师们，感谢你们的辛勤工作和提出的宝贵意见。

最后，我要感谢闻晨阳同学对我的包容和理解，对我生活的关心和帮助，工作的勉励和督促。感谢我的家人们对我选择的支持和为我提供的坚强保障，我在这一路的求学中缺席了太多重要的时刻，在今后的日子里定会承担起更多的家庭责任。

回望来时的路，在 2017 年夏天，没有任何科研经历，对人生的选择还处在懵懂之际时的我就选择了直博，不可谓不是一场豪赌，但好在结果还算差强人意。我自知生性愚钝，几乎没有擅长的领域，学习（考试）和科研是我迄今为数不多做得还算不错的事，我也将保持终生学习的能力和热情。我不奢求之后的职业里能取得重要成就，但能理解现有的物理学基础，并有机会予以加深，就足以让我心满意足了。（"Ich hege nicht den Wunsch, Neuland zu entdecken, sondern lediglich, die bereits bestehenden Fundamente der physikalischen Wissenschaft zu verstehen, vielleicht auch noch zu vertiefen." -Max Planck）