文章编号: 1005-5630(2023)03-0066-08

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2023.003.009

紫外飞秒激光泵浦氮气离子相干辐射

庄骋轩,卢琦,许亮,刘一 (上海理工大学光电信息与计算机工程学院,上海 200093)

摘要: 氮气分子在不同波长(中红外、近红外、紫外)强场飞秒激光的泵浦下,其分子离子在 传播前向能够发出具有良好相干性的可见光波段的窄带辐射。在 400 nm 紫外飞秒激光的激发 下,波长为 428 nm 和 423 nm 的相干辐射受到的关注较少,物理性质尚不明确。本研究对该 辐射的偏振性质、气压和泵浦激光能量依赖关系进行了系统的测量。实验发现,该辐射的偏 振与线偏振泵浦激光的偏振态保持一致,辐射强度随着气压和泵浦激光能量呈现出非线性的 增加。利用基于密度矩阵的强场电离和能级耦合模型,对氮气分子在强场中的电离和相关离 子能级在强场作用下的耦合进行了数值模拟研究。结果表明,在较大的激光强度范围内,氮 气离子上能级 $B^2\Sigma_u^+$ 和其离子基态 $X^2\Sigma_g^+$ 之间,对应 428 nm 和 423 nm 的振动态之间总是能够 形成粒子数反转,而且该反转对于激光参数具有鲁棒性,与实验观测结果一致。

关键词:飞秒脉冲;氮气离子;分子电离;空气激光 中图分类号:O437 文献标志码:A

Coherent emission of nitrogen ions pumped by ultraviolet femtosecond laser pulses

ZHUANG Chengxuan, LU Qi, XU Liang, LIU Yi

(School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: Nitrogen ions emit narrowband coherent emission under the pump of intense femtosecond laser pulses of different wavelengths (mid-infrared, near-infrared, or ultraviolet). The 428 and 423 nm radiation of the nitrogen ions obtained by excitation with 400 nm femtosecond laser pulses has received less attention and their properties are unknown. In this study, the polarization of the 428 nm emission and its dependence on the nitrogen gas pressure and the pump laser energy are systematically measured. It is found that the polarization of the 428 nm emission is the same as the linearly polarized pump pulses. Moreover, the radiation signal presents nonlinear dependence on the gas pressure and the pump pulse energy. Based on the modeling of the strong-

收稿日期: 2022-04-02

基金项目: 国家自然科学基金(12034013); 上海市教委创新计划(2017-01-07-00-07-E00007); 上海市科委 "科研 创新行动计划" 自然科学基金(22ZR1444100)

第一作者: 庄骋轩 (1996—),男,硕士研究生,研究方向为飞秒激光与原子分子的非线性相互作用。 E-mail: zcxylhy@163.com

通信作者:刘一(1978—),男,教授,研究方向为超快非线性光学。E-mail: yi.liu@usst.edu.cn

field ionization and the coupling of different energy levels of nitrogen ions in presence of the laser field, the population distribution of the nitrogen ions is simulated numerically. It is revealed that population inversion between the relevant energy levels of the upper level state $B^2\Sigma_u^+$ and the lower $X^2\Sigma_g^+$ level can be robustly established for a relatively large range of pump laser intensity, which agrees with the experimental observation.

Keywords: femtosecond laser pulses; nitrogen ions; ionization; air lasing

引 言

强场飞秒激光与空气的主要组分(氮气、氧 气、氩原子、二氧化碳)相互作用,能够产生无 需谐振腔的相干辐射,而该现象的发生常伴随着 受激辐射过程,因此这一类效应被统称为"空气 激光(air lasing)"^[1-6]。空气激光这一概念由加拿 大 Laval 大学 S. L. Chin 教授在 2003 年首次提 出^[4]。2011年, 普林斯顿大学 R. Miles 教授小组 和上海光学精密机械研究所程亚研究员小组利用 超快激光脉冲泵浦空气,分别观测到来自解离氧 原子和氮气分子离子的相干辐射[2-3],标志着空 气激光在实验研究上的重要突破。2011年至 今,研究人员已经演示了空气中的主要组成分 子,包括氮气、氧气、氩原子、二氧化碳,均能 够在波长适当的超快激光激发下发出无腔相干辐 射^[7-12]。空气激光效应的研究吸引了超快非线性 光学领域的关注,这主要是因为这种新的效应有 望实现从远程大气向地面发射相干光束,为光学 遥感提供全新概念的光源,有可能大大提高光学 遥感的灵敏度^[2,13-14]。从基础光学研究角度来 看,该效应蕴含着非常丰富的光物理效应,涉及 光电离、能级激发、辐射形成等多个过程,其特 征时间从阿秒到皮秒,跨越8个数量级。另外, 该效应是典型的强场与物质共振相互作用的产 物,量子相干性在其中发挥着重要的作用,诸多 物理机制问题尚待澄清。

对于氮气离子的相干辐射效应而言,Yao 等^[3]在首次报道中采用中红外可调谐激光(1100~ 1900 nm)脉冲进行激发,在实验中观测到来自 氮气离子第二激发态与基态之间的一系列不同波 长的辐射。其强度较高的 391 nm 和 428 nm 辐 射分别对应 $B^2\Sigma_u^+$ 态氮气离子振动基态(v'=0)至 离子基态 $X^2\Sigma_e^+$ 不同振动态(v=0,1)的跃迁。随 后,众多科研小组采用钛蓝宝石飞秒激光器输出 波长 800 nm 的飞秒激光激发氮气分子^[7-8,15-17]。 除了观测到 800 nm 飞秒激光单独泵浦氮气可以 产生前向相干的 391 nm 和 428 nm 信号之外, 研究人员还发现外加注入的微弱种子光脉冲可以 得到 2~3个数量级的能量放大[11,15,17-18]。这种新 的光放大效应的物理机制引起了超快强场领域的 极大兴趣和关注,因为在传统的光电离理论范畴 内,不同离子能级上的布居数分布是随着电离能 的增加呈指数递减的,高能级的粒子数布居远远 小于低能级,不会出现粒子数布居的反转。为了 解释这一新颖的强场物理效应,多种物理机制先 后被提出。这其中包括多能级耦合导致的粒子数 反转^[8,19],氮气离子瞬态准直导致的瞬态反转^[20], 转动态分布反转辅助的无反转放大^[21],量子相 干导致的无反转放大等[22-23]。研究人员还发现, 该辐射的建立时间和脉冲宽度与气压成反比,而 峰值强度与气压的平方成正比。基于这一特征, 该辐射的性质被认定为超荧光[18,24]。相比于中红 外或近红外飞秒激光泵浦氮气产生氮离子的相干 辐射,采用紫外飞秒脉冲的相关研究则少之又 少。2013年, Wang 等^[25]首次观测到在 400 nm 飞秒脉冲的泵浦下氮气离子会发出波长 391 nm 的辐射。近期, Wang 等^[26] 采用 400 nm 泵浦光 与微弱种子光相互交叉的实验装置,观测到种子 光方向上出现强烈的 423 nm 和 428 nm 辐射。 由此可见,直至目前,采用紫外飞秒激光泵浦氮 气离子的相关研究工作比较匮乏,对此情况下 423 nm 和 428 nm 辐射的基本性质、其对实验参 数的依赖关系的认识仍有待测量和进一步研究。

本文对紫外飞秒激光泵浦的来自氮气离子的 428 nm 和 423 nm 辐射进行了较为系统的研究。首先对其偏振性质进行了测量,实验发现该辐射为线偏振而且其偏振方向与泵浦激光的偏振

方向相同。随后,实验测量了 428 nm 信号随着 氮气气压和泵浦激光能量的变化,观测到信号强 度随着这两个参数均呈现出非线性增长的趋势。 为了深入理解这一相干辐射的物理本质,采用强 场电离和多能级耦合的物理模型对氮气离子 3 个 电子能级包含的 19 个振动能级的粒子数布居情 况进行了数值模拟研究。研究发现,对于泵浦激 光脉冲较大的强度变化范围,对应于 428 nm 和 423 nm 的两个跃迁通道总能够稳定地形成粒子 数反转,从而很好地解释了实验结果。

1 实验装置和方法

图 1 所示为实验中紫外飞秒激光泵浦氮气离 子产生前向相干辐射的装置图。商用钛宝石飞秒 激光器(Coherent Legend DUO)作为飞秒激光光 源。该激光系统的参数为:脉冲宽度 35 fs,中 心波长 800 nm,重复频率 1 kHz。为了获得波长 为 400 nm 的紫外泵浦脉冲,利用 I 类相位匹配 的 β 相偏硼酸钡晶体(BBO)对 800 nm 飞秒激光 进行高效倍频。通过改变 800 nm 脉冲的能量, 实验中能够获得的 400 nm 飞秒脉冲的能量最高 可以达到 1.5 mJ。然后利用焦距为 300 mm的会 聚透镜,将400 nm 泵浦激光聚焦于氮气气室之 中。气室中充入纯氮气,其气压可以在1mbar到 1000 mbar(1mbar=100 Pa)的范围内调节。泵浦激光 激发氮气,能够产生肉眼可见的长度约1~3 mm 的等离子体光丝。为了观测波长在423 nm 和 428 nm 的前向相干辐射,在出射光束路径上放 置 400 nm 以上的长波通滤色片或者 430 nm附近 的干涉滤波片(带宽为±10 nm)。通过使用不同 滤色片的组合,能够将 428 nm 和 423 nm辐射信 号从 400 nm 泵浦激光的光谱中分离出来,从而 消除泵浦激光所形成的光谱背景对实验测量的不 利影响。对于滤波后的辐射,采用透镜将其收 集,聚焦进入连接光谱仪的测量光纤。为了对辐 射的偏振性质进行测量,在出射光路上我们插入 宽带线栅偏振片。实验中转动该偏振片,测量通 过偏振片的信号强度与偏振片转角的关系,就可 以确定辐射信号的偏振。



图 1 强场飞秒激光泵浦氮气分子产生前向相干辐射的实验装置示意图和氮气离子能级图 Fig. 1 Schematic experimental setup for measurement of the forward coherent emission of nitrogen ions pumped by UV femtosecond laser pulses, and energy diagram of nitrogen ions

2 实验结果与讨论

首先对经过 BBO 晶体倍频产生的 400 nm 飞秒脉冲进行了表征和测量。图 2 所示为倍频脉 冲的典型光谱和偏振测量结果。从图 2(a)可以 看出,倍频脉冲的中心波长位于 402 nm,光谱 带宽约为 5 nm。倍频脉冲呈现出一定的光谱调 制,这主要是因为入射基频脉冲的光场强度较 大,在BBO 晶体中非线性自相位调制效应将带 来一定的影响^[27]。实验中基频 800 nm 飞秒脉冲 为水平方向的线偏振光。为了测量 400 nm 脉冲 的偏振状态,利用旋转线栅偏振片并测量透射光 强。实验结果呈现在图 2(b)中。从图 2(b)可以 看出,由 BBO 晶体产生的 400 nm 二次谐波为 竖直方向的线偏振光,符合 I 类相位匹配的偏振 设置。





氮气等离子体发射的前向辐射经过光谱滤波 之后, 典型的光谱如图 3(a)所示。波长 428 nm 和 423 nm 的辐射分别对应氮气离子 B²Σ_u⁺(v'= $0) - X^2 \Sigma_g^+ (v = 1)$ 和 $B^2 \Sigma_u^+ (v' = 1) - X^2 \Sigma_g^+ (v = 2)$ 的 跃迁。这两个不同波长的辐射都来自于氮气离子 第二激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 到离子基态 $X^2\Sigma_g^+$ 的跃迁,其差 异在于振动态量子数上能级 v 和下能级 v 的不 同。在实验中,我们改变了氮气的气压和泵浦激 光的能量并对辐射的强度进行了记录。图 3(b) 所示为 428 nm 辐射信号强度与氮气气压之间的 依赖关系,此实验中400 nm 泵浦脉冲的能量为 510 µJ。可以看到,在气压超过 150 mbar 的情况 下,我们观测到显著的辐射信号。在气压不断升 高的过程中,辐射信号越来越强,呈现出非线性 的依赖关系。这与 800 nm 近红外激光泵浦氮气 产生 391 nm 辐射的情况不同。在 800 nm 激光

作用下,391 nm 或者 428 nm 信号均随着气压呈 现出先上升而后下降的过程,而最优气压取决于 聚焦条件和入射泵浦脉冲能量^[7]。氮气离子辐射 信号与气压的依赖关系是一个较为复杂的过程, 涉及到依赖激光场强度的电离和能级耦合、等离 子体丝长度和横向尺度的变化、等离子体中放大





Fig. 3 The spectrum of the forward emission from nitrogen ions, and the 428 nm signal intensity as a function of nitrogen gas pressure and pulse energy of the pump laser

过程是否饱和等多方面的因素。在本实验中,因 为入射 400 nm 泵浦激光的能量较低,而且由 BBO 晶体倍频所产生的二次谐波的空间模式比 基频 800 nm 脉冲差,因此等离子体中 400 nm 激光光强较低。所以,随着气压升高至 1000 mbar, 光强并未呈现出饱和或者下降的趋势。图 3(c) 所示为 428 nm 信号随泵浦激光能量的变化。在 本实验的聚焦条件下,观测到该信号的能量阈值 约为 200 μJ,在泵浦激光能量大于该阈值的情况 下辐射信号与泵光能量呈现出高度的非线性依赖 关系,与文献中的结果相似^[26]。

进一步对 428 nm 和 423 nm 信号的偏振进 行了测量,实验结果如图 4 所示。图中蓝色虚线 对应于马吕斯 cos² θ 确定的角度依赖关系。测量 所得的信号与马吕斯定律确定的关系相符,说明 两个信号都为线偏振态,而且其偏振方向与泵浦 光的偏振方向一致。这与 800 nm 泵浦氮气离子 产生 391 nm 辐射的情况是类似的。





3 数值模拟结果

为了解释上述实验现象,我们利用密度矩阵 方法对氮气分子的电离以及氮气离子的激发过程 进行数值模拟。密度矩阵的动力学方程表示如下 (如无特殊说明,本文均采用原子单位 a.u.)

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{\rho}}{\mathrm{d}t} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar} \left[H, \boldsymbol{\rho} \right] + (1-n)\gamma \tag{1}$$

这里的泊松括号表示 $H 和 \rho$ 的对易关系。19× 19 维的方矩阵 ρ 表示此数值模型中涉及氮气离 子 19 个振动能级,它们分别是 $X(v=0\sim4)$, $A(v=0\sim6) 和 B(v=0\sim6)$ 。此模型主要关注 400 nm 单光子过程,而忽略了高阶激发过程。 哈密顿量 $H = H_0+H_i$,前者 H_0 为各能级的本征 能量,后者 H_i 表示光场与分子的电偶极相互作 用。对于 X 和 A 态的垂直跃迁, $H_i \Box D - \mu E(t)$ sin θ ,而对于 X 和 B 态的平行跃迁, $H_i = -\mu E(t)$ $\cos\theta$, μ 为跃迁偶极矩, E(t)为激光电场。激光 场表达式为 $E(t) = E_0\cos(w_1t)\sin(\pi t/\tau)$, $t = [0,\tau]$, E_0 为振幅, w_1 为激光场圆频率, τ 为光场时间 总长度。 $n(t) = \sum_{i=1}^{19} \rho_{ii}(t)$ 为时间依赖的氮气离子 的总布居数, i表示氮气离子的某个能级。 $\gamma_i(t)$ 为 瞬时产生某i能级氮气离子的电离速率,其表达 式为 $\gamma_i(t) = \omega_i(t)q_i$,这里 $\omega_i(t,\theta)$ 由分子电离理论 描述^[28], q_i 为氮气分子基态到氮气离子某i能级 的 Franck-Condon 因子^[29]。利用四阶龙格库塔 算法数值求解上述密度矩阵方程,时间步长 dt=0.05 a.u.,初态为 $\rho(t=0)=0$ 。激光参数为 $w_1 = 0.114$ a.u.,对应于激光波长 400 nm。脉宽 τ 为 35 fs,光强振幅 E_0 可变。考虑到角度平均效 应,对于不同角度氮气离子得到的 19 能级布居 数分布,利用下式得到最终的布居数分布

$$\eta_i = \sum_{\theta=0}^{\pi} \rho_{ii}(t_{\text{end}}, \theta) \sin\theta d\theta / K$$
(2)

式中K为归一化因子,它的表达式为 $K = \sum_{i=1}^{19} \eta_i$ 。 对于本文的理论计算结果,已经利用更小的时间 步长确认计算结果的收敛性。

图 5(a)给出了数值模拟得到的相关布居数 分布随激光强度的变化曲线。当激光强度在 5×10¹³ W/cm² 至 5×10¹⁴ W/cm² 范围内时, B0 态 的布居数总是大于 X1 态,同时 B1 态的布居数 始终大于 X2 态,即它们分别产生了 428 nm 和 423 nm跃迁的粒子数反转。更多的数值模拟表明 这两个通道的粒子数反转现象对激光的脉宽具有 很好的鲁棒性。我们的数值模拟结果与实验观测 结果相符,即 428 nm 和 423nm 辐射均由 400 nm





Fig. 5 The population density of the relevant energy levels depending on the pump laser intensity and the time evolution of the pump laser field from numerical simulation

激光协助的粒子数反转导致。为了揭示粒子数反 转的物理机制,我们对相关能级布居数进行了实时 跟踪,在激光脉冲峰值强度 $I_{laser} = 2.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 情况下对氮气分子电离和激发概率的时间依赖性 进行数值模拟,得到结果如图 5(b)所示。在 400 nm 激光作用下, X和 A态的跃迁具有很大 的失谐量(约为 0.057 a.u.), A 态在激光耦合的过 程中几乎不起作用,所以图 5(b)中我们选择了 0°取向的分子。随着激光场的演化,电离注入 的 X0 的布居数会显著增加,同时400 nm 激发 的 X0 到 B0 的近单光子跃迁概率也会增大,导 致了 B0 与 X1 的粒子数反转。同理, X0 与 B1 也有较大的抽运概率,从而实现 B1 与 X2 的粒 子数反转。至此,我们通过数值模拟揭示了400 nm 紫外飞秒激光泵浦氮气产生 428 nm 和 423 nm 相干辐射的物理机制为粒子数反转,此粒子数反 转是由电离的瞬时注入与单光子抽运共同造成的。

4 结 论

氮气分子在强场飞秒激光的泵浦下能够产生一 系列波长位于可见光波段的相干辐射,其物理性 质和机制的研究在近期备受关注。本文对 400 nm 紫外飞秒激光泵浦氮气而产生的波长为 423 nm 和 428 nm 的辐射进行了较为系统的实验和数值 模拟研究。实验研究发现,该辐射为线偏振态, 而且其偏振方向与泵浦激光的偏振方向相同。另 外,该辐射的强度随着氮气气压和泵浦激光能量 的增加均呈现出非线性增加的依赖关系。为了解 释该辐射的物理机制,结合强场电离和离子能级 在强场中相互耦合的模型,对氮气离子 19个振 动能级上的粒子数分布进行了数值模拟研究。数 值模拟发现在较大的激光强度范围内,氮气离子 第二激发态 B²Σ₁*态与离子基态 X²Σ₂*态之间能够 稳定地形成粒子数反转,从而产生对应的相干辐 射。这一研究为我们理解氮气离子"空气激光" 效应的物理机制提供了新的见解和认识,对于理 解原子和分子离子在共振强场作用下的行为具有 普适意义。

参考文献:

技术 [J]. 中国激光, 2020, 47(5): 0500005.

- [2] DOGARIU A, MICHAEL J B, SCULLY M O, et al. High-gain backward lasing in air[J]. Science, 2011, 331(6016): 442 – 445.
- [3] YAO J P, ZENG B, XU H L, et al. High-brightness switchable multiwavelength remote laser in air[J].
 Physical Review A, 2011, 84(5): 051802(R).
- [4] LUO Q, LIU W, CHIN S L. Lasing action in air induced by ultra-fast laser filamentation[J]. Applied Physics B, 2003, 76(3): 337 – 340.
- [5] KARTASHOV D, ALIŠAUSKAS S, ANDRIUKAITIS
 G, et al. Free-space nitrogen gas laser driven by a femtosecond filament[J]. Physical Review A, 2012, 86(3): 033831.
- [6] MITRYUKOVSKIY S, LIU Y, DING P J, et al. Backward stimulated radiation from filaments in nitrogen gas and air pumped by circularly polarized 800 nm femtosecond laser pulses[J]. Optics Express, 2014, 22(11): 12750 – 12759.
- [7] LIU Y, BRELET Y, POINT G, et al. Self-seeded lasing in ionized air pumped by 800 nm femtosecond laser pulses[J]. Optics Express, 2013, 21(19): 22791 – 22798.
- [8] XU H L, LÖTSTEDT E, IWASAKI A, et al. Sub-10-fs population inversion in N_2^+ in air lasing through multiple state coupling[J]. Nature Communications, 2015, 6: 8347.
- [9] DOGARIU A, MILES R B. Three-photon femtosecond pumped backwards lasing in argon[J]. Optics Express, 2016, 24(6): A544 – A552.
- [10] CHU W, ZENG B, YAO J P, et al. Multiwavelength amplified harmonic emissions from carbon dioxide pumped by mid-infrared femtosecond laser pulses[J]. Europhysics Letters, 2012, 97(6): 64004.
- [11] YUAN L Q, LIU Y, YAO J P, et al. Recent advances in air lasing: a perspective from quantum coherence[J].
 Advanced Quantum Technologies, 2019, 2(11): 1900080.
- [12] LI H L, YAO D W, WANG S Q, et al. AIR lasing: phenomena and mechanisms[J]. Chinese Physics B, 2019, 28(11): 114204.
- [13] MALEVICH P N, MAURER R, KARTASHOV D, et al. Stimulated Raman gas sensing by backward UV lasing from a femtosecond filament[J]. Optics Letters, 2015, 40(11): 2469 – 2472.
- [14] ZHANG F B, XIE H Q, YUAN L Q, et al. Background-free single-beam coherent Raman

spectroscopy assisted by air lasing[J]. Optics Letters, 2022, 47(3): 481 – 484.

- [15] YAO J P, LI G H, JING C R, et al. Remote creation of coherent emissions in air with two-color ultrafast laser pulses[J]. New Journal of Physics, 2013, 15(2): 023046.
- [16] WANG T J, JU J J, DAIGLE J F, et al. Self-seeded forward lasing action from a femtosecond Ti: sapphire laser filament in air[J]. Laser Physics Letters, 2013, 10(12): 125401.
- [17] LI H X, LÖTSTEDT E, LI H L, et al. Giant enhancement of air lasing by complete population inversion in N_2^+ [J]. Physical Review Letters, 2020, 125(5): 053201.
- [18] LIU Y, DING P J, LAMBERT G, et al. Recollisioninduced superradiance of ionized nitrogen molecules[J].
 Physical Review Letters, 2015, 115(13): 133203.
- [19] YAO J P, JIANG S C, CHU W, et al. Population redistribution among multiple electronic states of molecular nitrogen ions in strong laser fields[J]. Physical Review Letters, 2016, 116(14): 143007.
- [20] KARTASHOV D, HAESSLER S, ALIŠAUSKAS S, et al. Transient inversion in rotationally aligned nitrogen ions in a femtosecond filament[C]//High Intensity Lasers and High Field Phenomena 2014. Messe Berlin: OSA, 2014: HTh4B. 5.
- [21] RICHTER M, LYTOVA M, MORALES F, et al. Rotational quantum beat lasing without inversion[J]. Optica, 2020, 7(6): 586 – 592.
- [22] MYSYROWICZ A, DANYLO R, HOUARD A, et al. Lasing without population inversionin $N_2^+[J]$. APL Photonics, 2019, 4(11): 110807.
- [23] TIKHONCHUK V T, LIU Y, DANYLO R, et al. Modeling of the processes of ionization and excitation of nitrogen molecules by short and intense laser pulses[J]. Physical Review A, 2021, 104(6): 063116.
- [24] LI G H, JING C R, ZENG B, et al. Signature of superradiance from a nitrogen-gas plasma channel produced by strong-field ionization[J]. Physical Review A, 2014, 89(3): 033833.
- [25] WANG T J, DAIGLE J F, JU J J, et al. Forward lasing action at multiple wavelengths seeded by white light from a femtosecond laser filament in air[J]. Physical Review A, 2013, 88(5): 053429.
- [26] WANG S Q, LÖTSTEDT E, CAO J C, et al. Population inversion in N_2^+ by vibrationally mediated Rabi oscillation at 400 nm[J]. Physical Review A,

2021, 104(3): 032823.

- [27] BEGISHEV I A, KALASHNIKOV M, KARPOV V, et al. Limitation of second-harmonic generation of femtosecond Ti: sapphire laser pulses[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2004, 21(2): 318 – 322.
- [28] TONG X M, ZHAO Z X, LIN C D. Theory of molecular tunneling ionization[J]. Physical Review A,

2002, 66(3): 033402.

[29] GILMORE F R, LAHER R R, ESPY P J. Franck-Condon factors, *r*-centroids, electronic transition moments, and Einstein coefficients for many nitrogen and oxygen band systems[J]. Journal of Physical and Chemical Reference Data, 1992, 21(5): 1005 – 1107. (编辑:张 磊)