

用光电子能谱相位确定法同时测量阿秒超紫外线 XUV 脉冲的频率和强度时间分布

葛愉成[†]

(清华大学工程物理系粒子技术与辐射成像国家专业实验室, 北京 100084)

(2004 年 9 月 27 日收到, 2004 年 11 月 5 日收到修改稿)

介绍阿秒超紫外线(XUV)激发惰性气体原子产生光电子并在强激光电场中运动的半经典近似方法, 以及同时、直接、全面地测量阿秒 XUV 脉冲频率和强度时间分布的光电子能谱相位确定法. 采用飞秒超短脉冲激光和 XUV 间的交叉关联技术, 从不同激光强度下、与激光线性极化方向成 0° 或 180° 方向上测得的光电子能量积分谱, 可以重建 XUV 的频率和强度时间分布. XUV 脉冲时间宽度的测量范围从 $1/4$ 到 $1/2$ 激光振荡周期, 时间分辨率取决于激光束和 XUV 脉冲之间的相对延时控制精度和光路抖动时间. 所述方法可用于在阿秒尺度上的超快速测量, 以及有关电子在原子和分子中运动的超快速动力学过程研究.

关键词: 阿秒测量, 光电子能谱, 相位确定法, 超紫外线, 频率和强度时间分布

PACC: 3280F, 3365, 3280, 3365C

1. 引 言

超快速测量是当今科学前沿之一, 它是在飞秒 ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$) 尺度上研究超快速化学反应、光物理、遗传等生命物质运动的动力学过程, 以及在阿秒 ($1\text{as} = 10^{-18}\text{s}$) 尺度上研究电子在原子和分子中状态变化过程的重要手段. 为了研究这些超快速过程, 需要时间宽度越来越短的超紫外线 XUV (extreme ultra-violet) 和更高能量的 x 射线作为激发和探测光脉冲. 要产生一定能量、稳定、高精度、可重复的超短光脉冲, 在技术上有一定困难, 其中的原因之一是缺乏直接和可靠的测量方法. 自从 Drescher 等人 2001 年在 *Science* 上报了首次测量得到的 $650 \pm 150\text{as}$, 90eV 能量的 XUV 脉冲^[1], 并在 2002 年被评为 *Science* 十大科学突破之一以来, 直至最近 Kienberger 等人^[2]和 Goulielmakis 等人^[3] 2004 年分别在 *Nature* 和 *Science* 上报了产生并测量 250as 宽度 XUV 脉冲^[2]以及用它来直接测量几个振荡周期的激光光波电场^[3], 有关超短光脉冲的产生、测量和应用的研究一直是人们非常关注的课题^[4,5]. 最近几

年, 已经在原理上、特别是在较低能量范围内提出了几种测量 XUV 时间宽度的方法^[6-10], 理论上的时间分辨能力达到约 100as ^[9-11], 甚至更小^[12]. 但是, 在理论上计算和实验上处理测量数据时, 大都采用数学拟合高斯脉冲形状和宽度参数的方法, 不能直接从 XUV 或 x 射线激发工作物质 (通常是惰性气体原子) 产生的光电子能谱数据得到待测脉冲频率和强度的时间分布, 使得超快速测量技术的发展受到了很大的限制. 事实上, 由于实验技术和量子力学测不准关系的限制, 要产生能量带宽很窄的阿秒 XUV 或 x 射线是困难的. 另一方面, 获得直接测量得到的阿秒 XUV 的频率和强度时间分布, 对于理论模拟和实验探测电子在原子及分子中的运动, 具有非常重要的意义.

迄今为止, 国内很多作者对于原子或分子在强激光场中的电离和高次谐波产生机制作了深入的研究^[13-18], 王中阳等人对阿秒相干光的产生作了研究^[19], 但在产生和测量 XUV 或 x 射线阿秒脉冲方面尚缺乏系统的理论和实验研究.

总之, 探索和发展一种在较大 XUV 或 x 射线光子能量范围内较为通用或标准的、同时能获得频率

[†]E-mail: gzyc@sina.com

和强度时间分布参数的测量方法,是目前超快速测量研究领域急待解决的问题. 这个问题的解决,无论对新一代超短脉冲光源的建设,还是对阿秒计量学的发展和超快过程的研究,都将具有积极的促进和推动作用. 本文介绍一种新的测量方法:光电子能谱相位确定法.

2. 原 理

XUV 激发惰性气体原子产生光电子并在激光场中运动,如图 1(a)所示,实际上是光电子从一种能量的自由态跃迁到另一种能量自由态的过程. 为了简化,可以用半经典模型近似. 原子吸收一个较高能量的 XUV 光子后,立即电离出一个光电子. 随后该电子作为经典带电粒子在激光电场中运动. 激光电场可表示为

$$E_L(t) = E_a(t - t_0) \cos(\bar{\omega}_L t) = E_0 F(t - t_0) \cos(\bar{\omega}_L t), \quad (1)$$

其中 E_0 为电场幅度 $E_a(t - t_0)$ 在 $t = t_0$ 时刻的最大值, $F(t - t_0)$ 为载波包络函数, $\bar{\omega}_L$ 为激光角频率, $\phi = \bar{\omega}_L t_0$ 为载波-包络相位. 一般地,对于 XUV 激发惰性气体原子,光电子的初始动量分布和空间分布具有各向同性的特点,因此对于线性极化的超短脉冲激光,光电子的动量改变 ΔP 的方向将沿着激光的极化方向或其反方向,其大小决定于光电子产生的时刻. 除了满足 $\bar{\omega}_L t_k = k\pi, k = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$ 这些特殊时刻 t_k 周围小区域内的时间点外, t 时

刻产生的光电子在激光脉冲离开作用区后,沿着激光线性极化方向的终态的动量改变为

$$\begin{aligned} \Delta P(t) &= -e \int_t^\infty E_L(t') dt' \\ &\approx \frac{eE_a(t - t_0)}{\bar{\omega}_L} \text{sin}(\bar{\omega}_L t) \\ &= 2\sqrt{m_e U_0} F(t - t_0) \text{sin}(\bar{\omega}_L t), \quad (2) \end{aligned}$$

式中 $-e$ 和 m_e 分别是电子的电荷和质量, U_0 是电子在光波振荡周期内的平均动能(电子的质动能, ponderomotive energy) $U_p(t - t_0)$ 的最大值. $U_p(t - t_0)$ 可用下式表达:

$$U_p(t - t_0) = \frac{e^2 E_a^2(t - t_0)}{4m_e \bar{\omega}_L^2} = U_0 F^2(t - t_0). \quad (3)$$

由于 $\Delta P(t) \approx eE_a(t - t_0) \text{sin}(\bar{\omega}_L t) / \bar{\omega}_L$, 记 $\Delta P_0(t) = -e \int_t^\infty E_L(t') dt'$, 并且定义 $\beta = \Delta P(t) / \Delta P_0(t)$. 参数 β 表征了近似公式(2)的有效性. 然而,由于 $\Delta P(t)$ 和 $\Delta P_0(t)$ 在特殊点 t_k 及其周围时刻的数值非常小,且大大小于光电子的初始动量 $P_i(t)$, 因此用(2)式计算得到的光电子终态能量与实际的完全一致.

根据激光强度公式 $S = \epsilon_0 c E_0^2 / 2$, 则 $U_0 = e^2 S / 2\epsilon_0 c m_e \bar{\omega}_L^2$, 其中 ϵ_0 和 c 分别是真空中的介电常数和光速. t 时刻产生、在激光脉冲离开作用区后,与激光束垂直的平面内任意方向的光电子能量 $W(t, \theta)$ 可表示为

$$\begin{aligned} W(t, \theta) &= W_i(t) + 2U_p(t - t_0) \text{sin}^2(\bar{\omega}_L t) \cos(2\theta) \\ &\quad + \sqrt{8U_p(t - t_0) [W_i(t) - 2U_p(t - t_0) \text{sin}^2(\bar{\omega}_L t) \text{sin}^2 \theta]} \cdot \text{sin}(\bar{\omega}_L t) \cos \theta, \quad (4) \end{aligned}$$

式中 θ 是电子运动方向与激光线性极化方向之间的夹角, $W_i(t) = \hbar\bar{\omega}_X - W_b = \sqrt{2m_e P_i^2(t)}$ 是光电子的初始动能, $\bar{\omega}_X$ 为 XUV 的角频率, W_b 为光电子产生介质的电离能. 由于光电子的初始动能具有一定的分布,并且在受到线性极化或圆极化激光电场调制后,这种分布会发生进一步的非线性变化,因此这些光电子在任意的观测角度会形成复杂的能谱. $\theta = 90^\circ$ 方向上光电子能量只有下移(为 $2U_p(t)$), 其最大值为 $2U_0$, 可与 XUV 的能量带宽比拟. 因此, $\theta = 90^\circ$ 测量的能谱范围很小,需要很高分辨率的谱

仪. 若采用线性极化的激光束,且在 $\theta = 0^\circ$ 或 180° 方向上测量光电子,将大大简化实验装置的设计和布局,对谱仪的能量分辨率要求也大为降低.

测量 XUV 脉冲的实验装置与文献 [1] 相似. 通过高次谐波产生 (high-order harmonic generation, HHG) 的阿秒 XUV 被聚焦到约几个 μm 的束斑大小,同时激光束聚焦到几十 μm 的尺寸,并使两者在惰性气体流中实现交叉关联 (cross-correlation). 由于激光束远大于 XUV 束,因此技术上可以认为 XUV 激发原子产生的光电子被空间均匀的电场调制. 调制

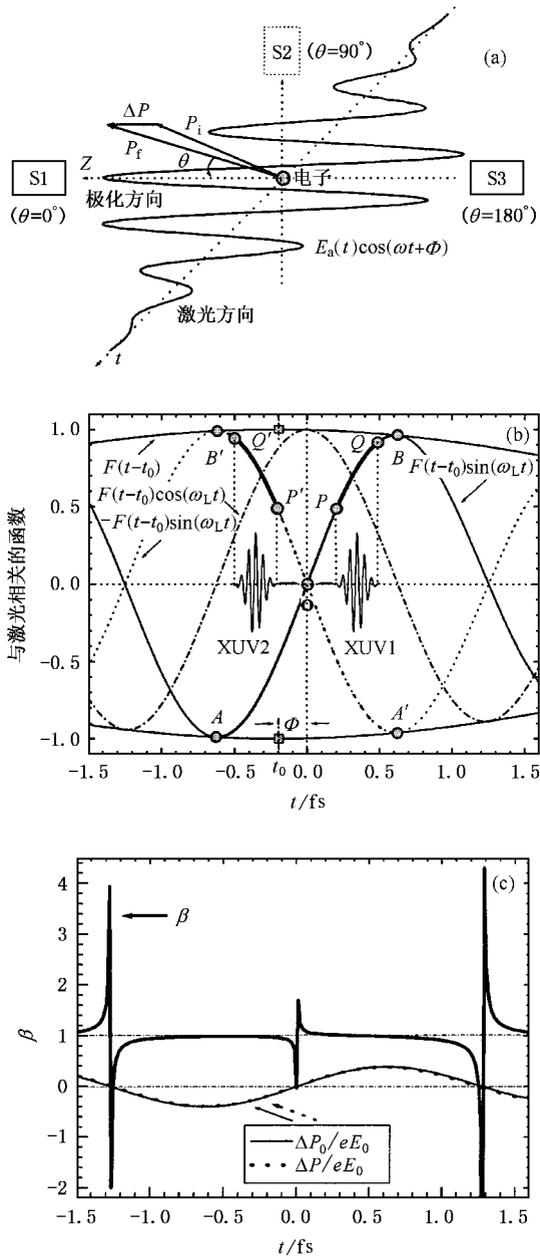


图 1 (a)一个电子在激光电场中的运动示意图, S1、S2 和 S3 分别是放置于 $\theta = 0^\circ$ 、 90° 、 180° 处测量光电子动能的谱仪。(b)与激光相关的函数:包络 $F(t-t_0)$ 、 $F(t-t_0)\cos(\omega_L t)$ 和 $F(t-t_0)\sin(\omega_L t)$ 。(c)对于波长 750nm, 时间宽度(半高宽 FWHM)7fs, $\phi = -30^\circ$ 的激光脉冲, 在一个光波周期 ($T = 2.5$ fs) 内的 β 参数变化, 以及 $\Delta P(t)/eE_0$ 与 $\Delta P_0(t)/eE_0$ 的比较(重叠在一起)

后的光电子可用微通道板位置分辨电子能量谱仪测量^[20]。这种类型的谱仪既可测量电子的飞行时间, 又可通过测量与微通道板平行相连的荧光屏上闪光位置确定电子的能量。后一种方式与前一种相比, 克服了飞行时间只对应于最快的那部分光电子的限制。

图 1(b)显示了与激光相关的函数形状和相位关系。显然, $\theta = 0^\circ$ 方向上与光电子动量变化相关的函数 $F(t-t_0)\sin(\omega_L t)$, 在相位上与载波 $F(t-t_0)\cos(\omega_L t)$ 相差 $\pi/4$ (四分之一周期)。在 $t=0$ 时刻附近包络函数 $F(t-t_0)$ 变化很小, 即近似为 1, 因此在该区域内 $F(t-t_0)\sin(\omega_L t) \approx \sin(\omega_L t)$, 如曲线段 AOB 所示。在同样的区间内 $\theta = 180^\circ$ 方向上与光电子动量改变相关的函数为 $-F(t-t_0)\sin(\omega_L t) \approx -\sin(\omega_L t)$, 如曲线段 B'OA' 所示, 在相位上与 AOB 相差 π 。图 1(c)是在一个激光光波周期内的 β 参数的变化, 而动量改变值 $\Delta P(t)/eE_0$ 与 $\Delta P_0(t)/eE_0$ 两条曲线完全重叠。

3. 方 法

测量 XUV 脉冲的频率和强度时间分布, 关键是要确定在特定方向上测量得到的光电子产生时刻(或相对于激光载波的相位)以及该时刻 XUV 光子的频率和强度, 即需要确定能谱的相位。

根据(4)式, 当 $\theta = 0^\circ$ 和 180° 时, $dW_f(t, \theta)d\theta = 0$, 因此, 这些角度方向上出射的光电子的能量随角度的变化很小, 谱仪在这些方向上可用较大的立体角接收光电子。 $\theta = 0^\circ$ 和 180° 出射光电子的终态动能表达式分别为

$$W_{0^\circ}(t) = W_i(t) + 2U_0 F^2(t-t_0) \sin^2(\omega_L t) + \sqrt{8U_0 W_i(t)} F(t-t_0) \sin(\omega_L t) \quad (5)$$

$$W_{180^\circ}(t) = W_i(t) + 2U_0 F^2(t-t_0) \sin^2(\omega_L t) - \sqrt{8U_0 W_i(t)} F(t-t_0) \sin(\omega_L t) \quad (6)$$

对于通常的激光强度, 条件 $U_0 \ll W_i(t)$ 一般都能满足, 光电子能量的变化以上两式中的第三项为主。图 1(b)中 XUV1 和 XUV2 是同一个 XUV 脉冲分别耦合到 $t > 0$ 和 $t < 0$ 时的示意图。以(5)式为例, 在半个激光振荡周期内, $t > 0$ 时刻产生的光电子动能增加, $t < 0$ 时刻动能减少。因此, 当激光太强时, 减少的动能会超过光电子的初始动能 $W_i(t)$ 而使其向反方向运动, 从而使能谱复杂化。对于 $\theta = 0^\circ$ 测量, 如果将 XUV 脉冲耦合到载波相位 $0-\pi/2$ 上 ($t > 0$, 图 1(b)中的曲线 PQ), 光电子能量将单调增加; 相反, 要使 $\theta = 180^\circ$ 方向上的光电子能量比其初始能量大, 必须使 XUV 脉冲耦合到载波相位 $-\pi/2-0$ 上 ($t < 0$, 图 1(b)中的曲线 P'Q')。对于 $t=0$ 时刻(图 1(b)中的 O 点)产生的光电子, 其能量不变。因

此若调节 XUV 脉冲的起始时刻 ($\theta = 0^\circ$ 测量) 或终止时刻 ($\theta = 180^\circ$ 测量) 在实验误差范围内与 $t = 0$ 时刻的载波相位重合, 则光电子能谱的低能端位置在

实验上将保持不变. 根据这个特点, 可以通过不同激光强度下的两次测量, 来直接确定不同时刻产生的光电子初始能量及其相对载波的相位.

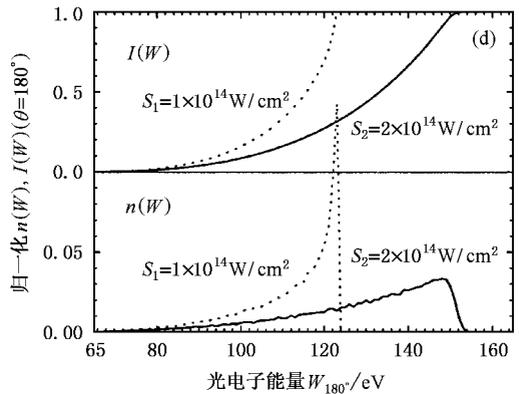
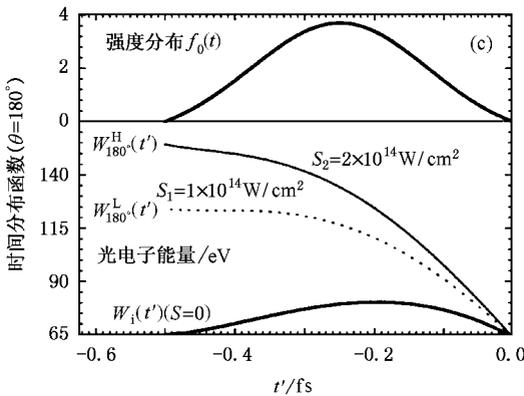
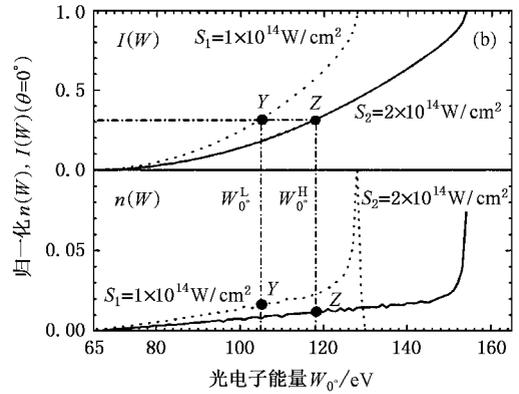
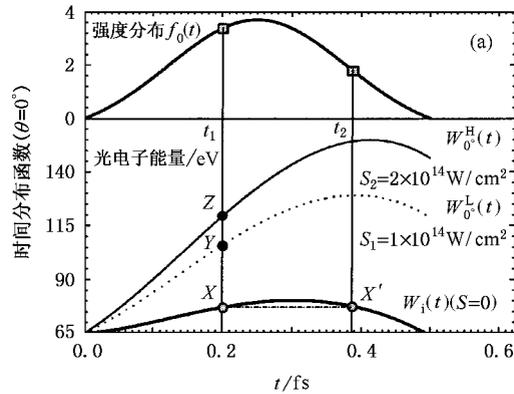


图 2 (a) $\theta = 0^\circ$ 测量时光电子的初始能量分布 $W_0(t)$ 和 XUV 强度分布 $f_0(t)$, 以及在不同激光强度 (S_1 和 S_2) 下的光电子终态能量 $W_0^L(t)$ 和 $W_0^H(t)$. (b) 不同激光强度下, $\theta = 0^\circ$ 时计算得到的光电子归一化能谱 $n(W)$ 及其能量积分谱 $I(W)$. (c) 与 (a) 相似, $\theta = 180^\circ$ 测量时的 $W_1(t')$, XUV 强度 $f_0(t')$, $W_{180}^L(t')$ 和 $W_{180}^H(t')$. (d) 与 (b) 相似, 不同激光强度下, $\theta = 180^\circ$ 时计算得到的光电子归一化能谱 $n(W)$ 及其能量积分谱 $I(W)$

对于 $\theta = 0^\circ$ 测量, 图 2(a) 显示了 XUV 脉冲的强度分布 $f_0(t)$ 和光电子初始能量分布 $W_0(t)$, 而它的起始时刻已经与载波 0 相位对齐. 设 W_0^L 和 W_0^H 分别对应低 (S_1) 和高 (S_2) 两种激光强度下的终态光电子能量 (此时分别有 U_0^L 和 U_0^H 两种最大质动能), 则根据 (5) 式, 在特定时刻 t 产生的光电子 (如图中的 Y 和 Z 点), 其相位 $\bar{\omega}_L t$ 和 $W_0(t)$ 满足如下方程组:

$$\begin{cases} H(t - t_0) \sin(\bar{\omega}_L t) = \frac{\sqrt{W_0^H} - \sqrt{W_0^L}}{\sqrt{2U_0^H} - \sqrt{2U_0^L}}, \\ W_0(t) = \left[\sqrt{W_0^H} - \sqrt{2U_0^H} \cdot \frac{\sqrt{W_0^H} - \sqrt{W_0^L}}{\sqrt{2U_0^H} - \sqrt{2U_0^L}} \right]^2. \end{cases} \quad (7)$$

对于 $\theta = 180^\circ$ 测量, 设 W_{180}^L 和 W_{180}^H 分别对应低 (S_1) 和高 (S_2) 两种激光强度下的终态光电子能量, 则根据 (6) 式, 在特定时刻 t 产生的光电子, 其相位 $\bar{\omega}_L t$ 和 $W_1(t)$ 满足与 (7) 式类似的方程组:

$$\begin{cases} H(t - t_0) \sin(\bar{\omega}_L t) = -\frac{\sqrt{W_{180}^H} - \sqrt{W_{180}^L}}{\sqrt{2U_0^H} - \sqrt{2U_0^L}}, \\ W_1(t) = \left[\sqrt{W_{180}^H} - \sqrt{2U_0^H} \cdot \frac{\sqrt{W_{180}^H} - \sqrt{W_{180}^L}}{\sqrt{2U_0^H} - \sqrt{2U_0^L}} \right]^2. \end{cases} \quad (8)$$

(7) 和 (8) 式是光电子能谱相位确定法的基础, 关键是要确定在两种激光强度下测量得到的、具有相同相位的光电子在能谱上的位置 W_0^L 和 W_0^H ($\theta = 0^\circ$ 测量) 或 W_{180}^L 和 W_{180}^H ($\theta = 180^\circ$ 测量), 即图 2(a) 中

Y 和 Z 点对应的能量. 由于激光包络函数 $F(t - t_0)$ 与 $\sin(\omega_L t)$ 结合在一起, 需要通过数值计算或迭代算法, 从(7)和(8)两方程组的第1式解出时间值 t . 如果用迭代算法, 取 $F(t - t_0)$ 的0级近似 $F(t - t_0) \approx 1$, 计算得到光电子产生时刻的1级近似值 $t_{(1)}$, 由此计算 $F(t - t_0)$ 的1级近似值 $F(t_{(1)} - t_0)$ 和光电子产生时刻的2级近似值 $t_{(2)}$, 如此继续, 得到收敛于特定时刻的 n 级近似值 $t_{(n)}$. 计算表明, 不管是用高斯型还是用正割型的激光包络函数, 迭代算法的收敛速度都很快, 只要经过3次以上的计算即可得到准确的光电子产生时刻 t .

设光电子能谱为 $n(W)$, 它是能量 W 处单位能量内的光电子数. XUV 的激发函数为 $\alpha(W)$, 即光电离截面的能量函数. 对于图 2(a) 所示的 XUV 强度分布 $f_0(t)$, 在 $t = t_1$ 时刻且在很小的 dt_1 时间间隔内产生的光电子数, 与测量得到的能量为 W_1 , 在很小能量间隔 dW_1 内的光电子数有如下关系:

$$f_0(t_1) dt_1 \alpha(W_1) = \alpha(W_1) n(W_1) dW_1, \quad (9)$$

其中 W_i 和 W_1 分别为 t_1 时刻的光电子初始动能和被激光调制后的终态动能, $\alpha(W_1)$ 是与谱仪几何因子、探测效率和气体原子数密度等有关的参数. 对于特定的系统, 可以近似地认为 $\alpha(W_1)$ 为常数. 将(9)式左边的 $\alpha(W_1)$ 挪到右边, 并在 $0-t$ 时间范围内(相应光电子能量在 $W_{\min}-W$) 进行积分, 得到

$$\int_0^t f_0(t_1) dt_1 = \int_{W_{\min}}^W \frac{\alpha(W_1)}{\alpha(W_1)} n(W_1) dW_1. \quad (10)$$

显然, 上式左边积分只与 XUV 本身的强度分布有关, 而与激光是否存在无关. 右边的积分上限能量 W (对应左边积分限时间 t) 与激光强度密切相关, 但两边积分值相同. 也就是说, 同一时刻产生的光电子, 尽管在不同强度激光调制下有不同的能量, 但按(10)式右边计算的积分(记为 $K(W)$)应该相同. 例如, 图 2(a) 中的 Y 和 Z 点, 它们具有各自不同的能谱位置, 如图 2(b) 下半部 $n(W)$ 所示, 但由于这两点具有相同的相位, 在光电子能量积分谱 $K(W)$ 上应该有相同的谱值, 如图 2(b) 上半部水平线所示. 为简单起见, 在以下具体的计算中假定(10)式中的参数 $\alpha(W_1)/\alpha(W_1)$ 为常数, 且等于 1, 即能量积分谱计算简化为 $K(W) = \int_{W_{\min}}^W n(W') dW'$.

以 $\theta = 0^\circ$ 的测量为例, 能谱相位确定法的具体步骤是, 首先用高分辨率能量谱仪在不同激光强度

下测量光电子能谱, 再对能谱进行积分得到 $K(W)$, 然后用两个积分谱上相同谱值所对应的能量作为 W_0^L 和 W_0^H 代入(7)式, 计算光电子产生时刻 t 和初始动能 $W_i(t)$, 最后将其中较高激光强度下测量得到的能量积分谱转换成时间积分谱 $K(t)$, 而它的时间微商 $f(t) = dK(t)/dt$ 就是所要测量的 XUV 强度的时间分布 $f_0(t)$.

在没有激光脉冲情况下, 图 2(a) 中 $W_i(t)$ 在不同时刻的两点 X 和 X' 对应于相同的能量. 采用一定强度的激光进行测量的目的, 是使光电子能谱在能量轴上充分展开(尽量往高能量拓展, 以免本底的干扰), 使得能谱上各点都对应单一相位, 如 Y 和 Z 点所示, 即 $W_0(t)$ 为单调上升曲线. 但对于特定的分布 $W_i(t)$, 这种能谱的拓展在高端仍会产生相位重叠, 因此, 原理上要求用更高的激光强度去消除这种重叠. 对于光电子初始动量分布 $P_i(t)$, 要使其动量 $P(t) = P_i(t) + \Delta P(t)$ 为单调上升曲线, 要求

$$\begin{aligned} dP(t)/dt &= dP_i(t)/dt + 2\sqrt{m_e U_0} \\ &\times [F(t - t_0) \sin(\omega_L t)]/dt \\ &\approx dP_i(t)/dt \\ &+ 2\omega_L \sqrt{m_e U_0} \cos(\omega_L t) > 0 \quad (11) \end{aligned}$$

即 $\sqrt{U_0} > [-dP_i(t)/dt] / [2\omega_L \sqrt{m_e} \cos(\omega_L t)]$. U_0 或 S 的最小值取决于 $P_i(t)$ 下降边 $-[dP_i(t)/dt] \cos(\omega_L t)$ 的最大值. 上述分析结果同样适用于对 $W_0(t)$ 的单调化要求. 对某些具有很快下降边的 $P_i(t)$, 要使 $W_0(t)$ 完全实现单调化, 需要很高的激光强度, 由此可能产生高本底的影响, 因此需要根据实际情况确定合适的激光强度.

解决相位重叠的有效方法是进行 $\theta = 180^\circ$ 的测量, 此时需将 XUV 的终止时刻与载波 0 相位对齐, 如图 2(c) 所示, 有关的计算过程与进行 $\theta = 0^\circ$ 测量时完全相同. 由于在实验上可以确定将 XUV 脉冲从起点与载波 0 相位重合到终点与之重合之间的延迟时间 Δt , 因此对 $\theta = 0^\circ$ 和 180° 分别测量得到的两个归一化积分谱 $K(t)$ 和 $K(t')$ 在时间和谱值上具有互补的关系, 即 $t' = t - \Delta t$ 和 $K(t) + K(t') = 1$. 通过组合这两条曲线(使之重合), 并去除不合理的实验数据(在曲线上表现为偏离正常位置), 可以得到消除了相位重叠的新的强度积分谱, 从而计算出更为准确的 XUV 强度重建谱 $f(t)$. 用曲线组合方法同样可以优化 $W_i(t)$.

4. 计 算

设 XUV 脉冲的强度时间分布 $f_0(t) = -0.63 + 4.33 \exp[-2(t - 0.25)^2/0.26^2]$, 它是一个半高宽 (FWHM) 为 260 as 的高斯形函数, 如图 3(a) 的上半部分实线所示. 用 Kr 作为工作气体, 其 4p 电子的电离能为 14 eV. 光电子能量的初始分布 $W_i(t) = 65 + 17.6t + 496.9t^2 - 1736.6t^3 + 1760.4t^4 - 867.3t^5$ (eV), 它是一条单峰结构的简单拟合曲线, 最大能量在 0.3 fs 处, 与强度分布曲线的中心 (0.25 fs) 并不重合, 如图 3(a) 的下半部分实线所示. $W_i(t)$ 在 65—80.2 eV 之间 (相应的 XUV 光子的能量范围在 79—94.2 eV), 时间 0—0.5 fs. 采用 Ti:sapphire 激光器产生的波长 $\lambda = 750$ nm, 宽度 $\tau = 7$ fs (FWHM) 的线性极化激光束. 激光脉冲包络为高斯型, $F(t - t_0) = \exp[-4 \ln 2 \times (t - t_0)^2/\tau^2]$, $\Phi = -30^\circ$, 激光振荡周期 $T = 2.5$ fs. 在 $\theta = 0^\circ$ 测量时, $S_1 = 1 \times 10^{14}$ W/cm², $S_2 = 2 \times 10^{14}$ W/cm², 相应的 $U_0^I = 5.25$ eV, $U_0^{II} = 10.5$ eV. 图 3(a) 显示了用 (5) 式计算得到的光电子终态能量 $W_0^I(t)$ 和 $W_0^{II}(t)$. 图 3(b) 是对应的能谱 $n(W)$ 和能量积分谱 $I(W)$ (计算时取能量间隔 Bin = 1 eV). 根据这些数据, 按能谱相位确定法分别计算出图 3(a) 和图 4(a) 中圆点所示的光电子初始能量分布 $W_i(t)$ 和强度时间积分谱 $I(t)$. 前者所在曲线的一端有明显的弯曲和堆叠; 后者所在曲线的一端未接近 1 (谱归一化常数). 因此在这两种激光强度下, 通过 $\theta = 0^\circ$ 计算得到的光电子初始能量和强度积分谱, 在较大时间处有明显的相位重叠.

图 3(a) 和图 4(a) 中的圆圈, 表示在上述两种激光强度条件下, 对 $\theta = 180^\circ$ 计算 (参看图 3(c) 和 (d)) 得到的初始能量和强度积分谱, 其中已进行了时间和谱值的互补计算, $\Delta t = 0.5$ fs. 可以看出, 对 $\theta = 180^\circ$ 的计算结果, 相位重叠并不明显, 在较大时间范围内重建了初始能量分布. 这与所选择的初始分布 $W_i(t)$ 右侧的下降速度大于左侧有关, 使得在当前相同的激光强度条件下, $\theta = 180^\circ$ 计算的重建结果基本消除了相位重叠.

组合 $\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$ 两次计算结果, 除了相位重叠部分数据有偏离外, 图 3(a) 中圆点和圆圈共同组成的曲线成功地恢复了初始能量分布 $W_i(t)$ (实线所示). 图 4(b) 中圆点和圆圈分别是对图 4(a) 中相应曲线求微商得到的强度时间分布. 很明显, $\theta =$

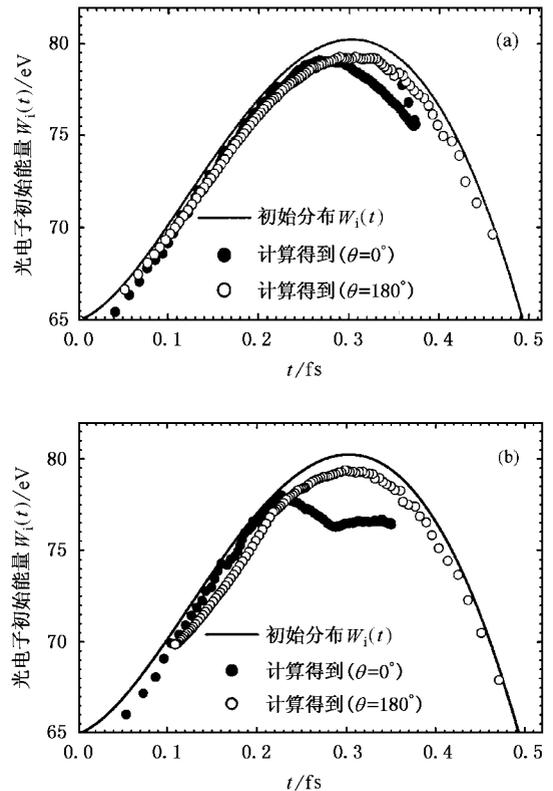


图 3 (a) 初始和计算得到的光电子能量时间分布 (b) $\Delta t = 0.08$ fs 时计算得到的初始能量时间分布

0° 的计算结果由于相位重叠而在一端偏离了原始分布 $f_0(t)$ (实线). $\theta = 180^\circ$ 的计算结果在较大时间范围内恢复了原始强度信息. 如果从图 4(a) 中圆点和圆圈共同组成的数据拟合一条曲线 (如实线所示), 然后计算其微商, 得到图 4(b) 中点线所示的分布 $f(t)$, 它除了在 $t > 0.43$ fs 时有些偏离外, 非常接近于初始分布 $f_0(t)$. 如果对于图 4(a) 中圆点和圆圈共同组成的数据分两段拟合, 例如对于在较大时间值处主要以 $\theta = 180^\circ$ 测量对应的数据可拟合得到 $I(t)$. 从 $I(t)$ 计算得到的 $f(t)$ 如图 4(b) 中的方块所示, 它在 $t > 0.30$ fs 处完全与 $f_0(t)$ 重合. 上述点线和方块组成的数据的高斯拟合为 $-0.52 + 4.28 \exp[-2(t - 0.25)^2/0.25^2]$, 与 $f_0(t)$ 相比差别非常小, 即 $f(t)$ 完全重建了 $f_0(t)$.

为了组合 $\theta = 0^\circ$ 和 180° 两组计算数据, 需要确定 XUV 脉冲的最大时间宽度 Δt . 虽然, 在技术上调节 XUV 脉冲从起始点与 0 相位重合到终止点与之重合之间的时间为 Δt , 但从上述两组计算数据的重合程度同样可以判断所取 Δt 值的合理性. 因为 Δt 取值合理时, 两组计算数据的重合部分较多, 反之则

只有在某点交叉. 此外, 可通过延迟测量来进一步确认 Δt 取值的合理性. 不管是 $\theta = 0^\circ$ 还是 180° 测量, 都使 XUV 的起点或终止点偏离 0 相位一定的时间 δt . 图 3(b) 是取 $\delta t = 0.08 \text{ fs}$, $S_1 = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $S_2 = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时的计算结果.

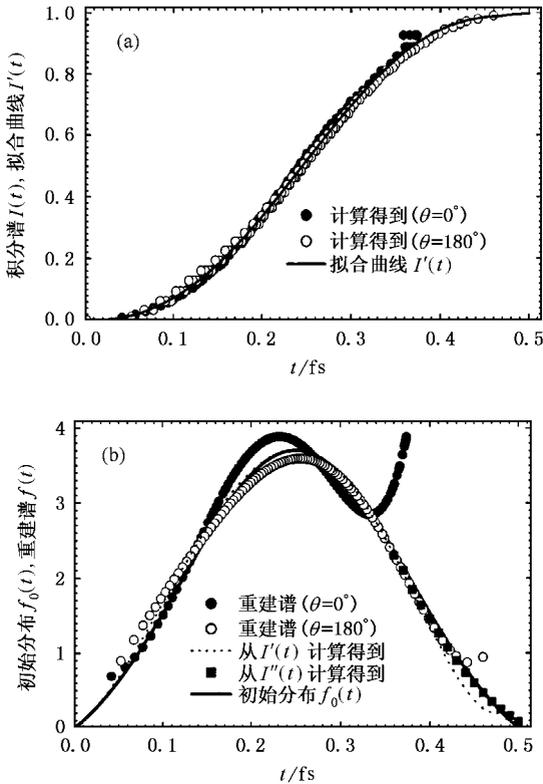


图 4 (a) 通过计算重建的 XUV 强度时间积分谱 $I'(t)$; (b) 重建的 XUV 强度时间分布 $f(t)$ 与 $f_0(t)$ 的比较

5. 讨 论

由于 Kr 原子的电离能 $W_b = 14 \text{ eV}$, 远小于上述计算中的 XUV 光子能量, 因此半经典近似是合理的^[21, 22]. 文献 8] 用量子力学和经典电动力学方法, 分别计算了时间宽度 70as (FWHM), 100eV 的 x 射线激发 He 原子 ($W_b = 24.6 \text{ eV}$), 产生的光电子被波长 800nm, 强度 $6.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的激光调制后的光电子能谱, 发现两种结果几乎重合. 可以预见, 光电子能谱相位确定法在几十 eV 以上很宽的光子能量范围内是适用的, 并可以选择多种工作介质 (如惰性气体).

在强激光场中, 气体原子会发生场致电离 (laser-induced ionization, LII) 和 HHG 和 阈上电离

(above-threshold ionization, ATI) 等过程, 限制了对激光强度的进一步提高. 这三种过程对测量本底的影响, 与激光强度密切相关. 通过计算得到, 使中性 He, Ne, Ar, Kr, Xe 气体原子发生 LII 的激光强度阈值, 分别为 1.5×10^{15} , 8.7×10^{14} , 2.5×10^{14} , 1.5×10^{14} , $8.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 虽然本文所采用的激光强度已接近中性 Kr 原子的 LII 阈值, 但 LII 电子的能量小于 $2U_0$, 对光电子能谱没有影响. 根据 HHG 的能量截断法则 (cut-off law)^[23], 即 HHG 能谱约在 $W_b + 3.17U_0$ 处截止, 若不考虑延迟测量, U_0 在 10eV 左右, 因此 HHG 的能谱将在 50eV 以下的低能区, 与光电子谱没有重叠. 与 LII 相比, ATI 谱将较平稳地延伸至 $10U_0$, 但在数量级上减少很多^[24]. 因此, 对于光电子能谱有影响的底源主要是 ATI. 实际上, 只要测量得到的本底谱截止能量低于光电子谱下限能量, 或者本底谱和光电子谱的重叠并不严重, 适当增加激光的强度是可行的. 文献 1] 除激光强度为 $S = 4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 外其他条件与本文相同, 其测量结果证明了本底是很低的.

在本文计算所采用的两种激光强度下, 同相位的光电子能量差值达 0—13eV, 这是在实验上可以测量的. 可以通过控制两个结构上同轴的压电晶体反射球面间的相对距离, 实现精确地调节 XUV 和激光脉冲之间的相对延时. 在技术上, 反射镜球面加工精度带来的像差和晶体控制精度引起的时间不确定度可以达到 70as^[1], 谱仪的能量分辨率可以达到 $\sim 0.1 \text{ eV}$ 甚至更好^[20]. 随着实验技术的进步, 这些指标将进一步得到提高. 除此以外, 在多脉冲重复测量过程中, 系统的时间抖动和涨落将直接影响测量结果. 这些抖动和涨落主要是脉冲间的相位涨落和测量装置特别是真空分子泵等设备振动引起的. 降低噪声和干扰, 提高激光脉冲载波-包络相位和强度的稳定性, 以及减少上述诸因素对测量的影响, 无疑是实验成功的关键.

$\theta = 0^\circ$ 和 180° 测量需要两套谱仪, 或者用一套谱仪进行两次测量. 为了减少和简化实验装置及实验步骤, 可以使载波相移 180° 的方法, 在 $\theta = 0^\circ$ 方向上实现 $\theta = 180^\circ$ 的测量. 另外, 无论 $\theta = 0^\circ$ 或 180° 测量, 实际上并不严格要求 XUV 脉冲的时间起点或终止点分别与载波 0 相位重合, 只要将 XUV 脉冲耦合到能量单调变化的半个周期内, 且能使光电子谱与本底谱分开. 这样既能降低激光的强度, 又可测量较宽时间分布的 XUV.

以上的计算假定了不同能量的 XUV 光子具有相同的光电离截面. 对于 XUV 激发函数 $\alpha(W)$ 不是常数的系统, 只要它在 XUV 能量带宽内的变化相对较小, 那么在计算能量积分谱 $K(W)$ 时, 需将 $n(W')$ 乘上因子 $1/\alpha(W_i)$, 即 $K(W) = \int_{W_{\min}}^W [1/\alpha(W_i)] \times n(W')dW'$, 其中 W_i 为与光电子能量 W' 对应的初始动能 W_i .

6. 总 结

用光电子能谱相位确定法, 能同时、直接、全面地测定阿秒 XUV 脉冲的频率和强度时间分布. 采用飞秒超短激光和 XUV 间的交叉关联技术, 从与激光线性极化方向成 0° 及 180° , 在不同激光强度下测量得到的光电子能量积分谱, 重建 XUV 的频率和强度时间分布. 所需激光强度的选择, 依赖于实际待

测量 XUV 脉冲的频率时间分布形状. XUV 脉冲的时间宽度测量范围, 从 $1/4$ 激光振荡周期到最大 $1/2$ 周期, 能量范围从几十 eV 的 XUV 到更高能量的 x 射线. 测量的时间分辨率取决于光路系统的抖动和双光束之间的延时控制精度. 为了更好地重建 XUV 的频率和强度时间分布, 进一步提高测量结果的时间分辨率, 需要进行不同激光强度下的重复测量, 并从测量结果选择合适的激光强度.

准确测量阿秒超短 XUV 及 x 射线脉冲的频率和强度时间分布, 有助于提高这些光源的品质、发光效率和安全性、可靠性等指标. 它同样能改进和提高表面、固体、凝聚态等物理以及化学、生物等学科中非常重要的时间分辨超快速测量技术.

作者感谢与北京大学江栋兴教授, 叶沿林教授, 原子能研究院刘祖华研究员的讨论. 感谢何海萍大量计算和讨论.

-
- [1] Drescher M *et al* 2001 *Science* **291** 1923
 [2] Kienberger R *et al* 2004 *Nature* **427** 817
 [3] Goulielmakis E *et al* 2004 *Science* **305** 1267
 [4] Drescher M *et al* 2002 *Nature* **419** 803
 [5] Hentschel M *et al* 2001 *Nature* **414** 509
 [6] Constant E *et al* 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3870
 [7] Kobayashi Y *et al* 1998 *Opt. Lett.* **23** 64
 [8] Scrinzi A *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 412
 [9] Itatani J *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173903
 [10] Kitzler M *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173904
 [11] Bandrauk A D *et al* 2003 *Phys. Rev. A* **68** 041802
 [12] Quéré F *et al* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 073902
 [13] Chen B Z 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 674 (in Chinese) [陈宝振 2002 物理学报 **49** 674]
 [14] Chen B Z 2000 *Chin. Phys.* **9** 351
 [15] Wu C Y and Gong Q H 2001 *Chin. Phys.* **10** 814
 [16] Zhou X X and Li B W 2001 *Acta. Phys. Sin.* **50** 1902 (in Chinese) [周效信、李白文 2001 物理学报 **50** 1902]
 [17] Wu J H and Yan J M 2003 *Chin. Phys.* **12** 1390
 [18] Li P C *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 750 (in Chinese) [李鹏程等 2004 物理学报 **53** 750]
 [19] Wang Z Y, Gong S Q and Xu Z K 1999 *Acta. Phys. Sin.* **48** 961 (in Chinese) [王中阳、龚尚庆、徐至宽 1999 物理学报 **48** 961]
 [20] Ge Y C *et al* 2005 *Acta. Phys. Sin.* (in Chinese) [葛愉成等 2005 物理学报 **54** 209]
 [21] Gallagher T F 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2304
 [22] Corkum P B, Burnett N H and Brunel F 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 1259
 [23] Krause J L *et al* 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 3535
 [24] Milošević D B and Ehlötzky F 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3124

A new method for directly measuring frequency and intensity temporal profiles of attosecond XUV pulse simultaneously and completely

Ge Yu-Cheng[†]

(*State Laboratory of Particle and Radiation Imaging , Department of Engineering Physics , Tsinghua University , Beijing 100084 , China*)

(Received 27 September 2004 ; revised manuscript received 5 November 2004)

Abstract

A new method of phase determination is presented to measure the frequency and intensity temporal profiles of attosecond XUV pulses directly , simultaneously and completely . Using a cross correlation between femtosecond laser and attosecond XUV , such profiles can be reconstructed from photoelectron energy spectra measured with two different laser intensities at 0° and 180° with respect to the linear laser polarization . The method has a temporal measurement range from a quarter to about half of laser oscillation period . The temporal resolution depends on the jitter and control precision of the laser and XUV pulses . The method can be used for ultra-fast measurement on attosecond time scale .

Keywords : attosecond measurement , photoelectron energy spectrum , phase determination , XUV , energy and intensity temporal profiles

PACC : 3280F , 3365 , 3280 , 3365C

[†]E-mail : gzygc@sina.com