

利用超短脉冲激光和光电子能量微分谱直接测量 窄带飞秒超紫外线 XUV 脉冲的时间结构

葛愉成[†] 李元景 康克军

(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 6 月 21 日收到, 2004 年 10 月 20 日收到修改稿)

介绍用亚皮秒超短激光脉冲直接测量窄带飞秒真空超紫外线(XUV)脉冲时间结构的方法. 可以由 XUV 激发惰性气体产生, 并在与超短脉冲激光的线性极化方向成 0° 或 90° 的方向上测量得到的光电子能量微分谱重建这种时间结构. 谱仪的能量分辨率和所选取的能量间隔大小是测量及计算的两个重要参数. 上述方法有很宽的时间测量范围和很高的分辨率, 可以用于飞秒计量学和与原子运动有关的超快速动力学过程的研究.

关键词: 超快速测量, 超短脉冲激光, 超紫外线(XUV)时间结构, 光电子能量微分谱

PACC: 3365, 3280F, 3280, 3365C

1. 引 言

在 100 飞秒($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$)时间尺度上研究凝聚态、表面、化学和生物等物质中的原子运动过程, 以及在阿秒($1\text{as} = 10^{-18}\text{s}$)时间尺度上研究原子中电子的运动过程, 需要时间宽度越来越短的超紫外线(extreme ultra-violet, XUV)和更高能量的 x 射线作为激发及探测光脉冲. 自从 2001 年 Drescher 等人报道了首次测量得到时间宽度 $650 \pm 150\text{as}$ XUV 脉冲^[1]以来, 产生和测量阿秒 XUV 一直是最近几年超快速测量领域的前沿课题^[2-5]. 但在另一方面, 产生和测量亚皮秒($1\text{ps} = 10^{-12}\text{s}$)和飞秒时间宽度的 XUV 以及几个 keV 能量 x 射线的时间结构, 在理论和技术上一直是一种挑战. 这是由于, 对于皮秒时间宽度的 XUV 或 x 射线脉冲, 可以用成熟的条纹相机技术和常规的快电子学来测量; 而对于更短的这些光脉冲, 普遍缺乏或未曾了解可资利用的相互作用, 特别是非线性光学过程. 需要指出的是, 国内已有作者对原子、分子和离子在强激光场中的电离和发光行为作了研究^[6-8].

迄今为止, 已经有人提出过几种产生和测量飞秒 x 射线的方法及技术. Bucksbaum 和 Lindenberg 等人较早尝试用晶体上布拉格衍射的方法产生和测量

亚皮秒同步辐射 x 射线脉冲^[9,10], Zholents 等人对储存环中电子束团切片的方法得到飞秒 x 射线脉冲^[11]. 另一种产生超短 x 射线的方法, 是 Schoenlein 等人报道的激光同步 90° 汤姆孙散射 x 射线光源技术^[12]. 经过加速后的电子束与聚焦后的激光束以 90° 角相互碰撞, 在电子束的前进方向上产生 keV 甚至更高能量的 x 射线光子, 其脉冲的时间宽度对应激光或电子束的最小时间宽度. 在测量方面, Adams 提出了一种时间分辨 x 射线探测技术^[13]. 该技术利用飞秒激光脉冲激发半导体价带上的电子, 从而增加半导体材料的 x 射线吸收能力, 使之成为一种 x 射线的快速吸收开关. 然而, 这种开关所用的工作物质, 例如 GaAs 晶体, 对待测量 x 射线具有很强的能量选择性. 另外, 与此相关的技术难题, 如晶体较长的退激发时间和在强激光脉冲下的热损伤效应等, 都限制了这种方法的应用. 还有一种是针对飞秒或亚飞秒 x 射线脉冲, Constant 等人提出的利用条纹相机原理测量其时间宽度, 但需要圆极化或时间相关线性极化的强激光脉冲作为光电子的偏转电场. 通过测量 x 射线激发产生的、与激光传输方向垂直的平面上的光电子角度分布, 可以得到 x 射线的脉冲宽度^[14]. 但是, 经过仔细分析后不难发现, 该方法存在很多问题. 首先, 要产生稳定的飞秒级超短时间宽度圆极化或时间相关线性极化的激光

[†]E-mail: gzgyc@sina.com

脉冲,在技术上有一定的难度,需要非常精确和稳定的分光、同步和合成装置.其次,在任何方向上测量得到的光电子能谱包含了不同时刻和不同初始出射角的光电子的贡献,即仍是一种不同参数的卷积结果,很难简单地从一个方向上或一定角度范围内测量得到的光电子能谱直接定出待测量 x 射线的脉冲时间宽度.

事实上,由于缺乏准确的直接测量 x 射线脉冲宽度及时间结构的方法和技术,极大地限制了飞秒计量学和相关应用领域的发展.因此,一种直接的、具有较大时间量程的 x 射线脉冲时间结构的测量方法和技术,将具有广泛的重要性,并将推动飞秒科学和超快速测量技术的进步.同时,该技术将有助于超短 x 射线和激光光源技术中某些重要参数的测量与控制.

2. 测量原理

一个原子在外场中受到 XUV 或 x 射线的激发并电离,其光电子的运动如图 1(a)所示.其中 P_i , P_f 和 ΔP 分别为光电子的初始动量、激光脉冲离开作用区后的最终动量以及光电子在激光脉冲中获得的动量改变, θ 为电子最终运动方向与激光极化方向之间的夹角.一般地,对于 XUV 激发性气体原子,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激光脉冲, ΔP 的方向将沿着激光的极化方向或其反方向,其大小及方向决定于光电子产生的时刻或与之相关的激光脉冲电场相位.图 1(a)中 S1, S2 和 S3 分别是放置于与激光线性极化方向成 $0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ 处测量光电子动能的电子能量谱仪.

图 1(b)是 XUV 和激光脉冲交叉关联(cross-correlation)测量装置示意图.能量带宽很窄(要求几个 eV)的超短 XUV 聚焦到约几个微米的束斑大小,同时激光脉冲聚焦到几十 μm 的尺寸,并使两者在惰性气体放气流中实现交叉关联.由于激光束尺寸远大于 XUV 的尺寸,因此技术上可以认为 XUV 激发产生的光电子被空间均匀的电场所调制.调制后的光电子能量由右边所示的微通道板位置分辨电子能量谱仪(Micro-Channel-Plate Position-Resolved Electron Energy Spectrometer, MCP-PREES)测量.该谱仪由电子飞行管道(flight tube)、偏转电极、双微通道板 MCP、荧光屏和电荷耦合器件(CCD)图像读取装

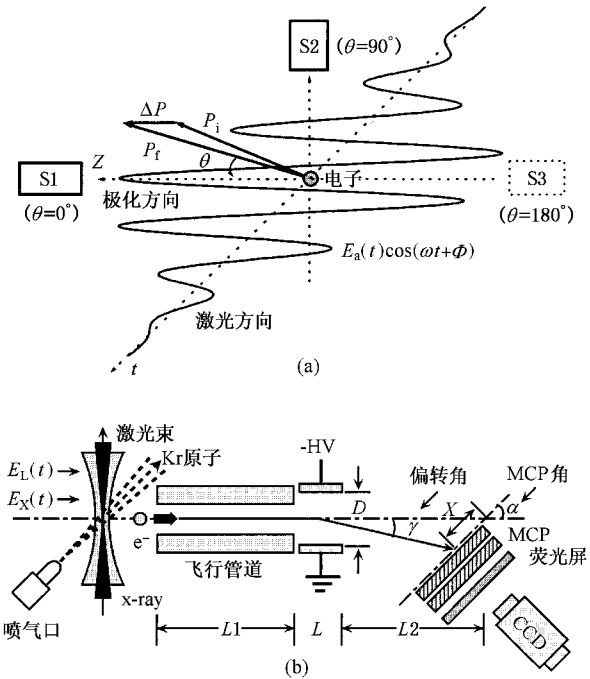


图 1 (a) 一个电子在激光电场中的运动, S1, S2 和 S3 分别是放置于 $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ 处测量被 XUV 激发和被激光调制的光电子动能的谱仪. (b) 激光和 XUV 的交叉关联及微通道板位置分辨光电子能量谱仪的结构示意图

置等组成,整个系统工作在真空环境中.不同能量的光电子经过飞行管道(一般长度为 50cm 左右)后在偏转电场的作用下,会以不同的偏转角飞向微通道板,并在通道管壁上激发出次级电子.这些次级电子被加于微通道板两面的高压电场加速,从而激发出更多的次级电子,最后输出一个较大的信号脉冲.一般微通道板加上 2000V 左右的高压,增益高达 10^6 左右,但对于 100eV 左右的电子,其量子效率较低^[15].例如,对于镀上 10—20nm 厚度的金膜和 100eV 左右能量的电子, MCP 的量子探测效率大概在 10% 左右.镀 NaK(Tl) 或 CsK(Tl) 材料的 MCP,可以提高量子探测效率,但 NaK(Tl) 易潮解.为了提高信号输出幅度和灵敏度,往往将两片微通道板级联使用.微通道板和荧光屏之间加上 6000V 左右的高压加速电场,使从 MCP 出射的电子进一步加速,并轰击荧光屏发光,光点的位置对应特定的光电子入射能量. MCP 和荧光屏与电子在飞行管道中的直线飞行方向具有一定的夹角,用来减小电子能量和荧光屏上发光位置之间的非线性关系.这种类型谱仪的工作方式有两种,一是电子飞行时间测量方式,即测量光电子从被激发产生到被谱仪探测到之间的飞行时间(Time of Flight, TOF);二是位置分辨测量方

式通过测量荧光屏上发光点位置来计算光电子的能量. 后一种方式是本文首先提出的, 与前一种方式相比, 有相同的探测效率, 但克服了测量值只对应于飞行时间最短的那部分光电子的限制(这是由于 MCP 的高增益和快速上升时间决定的). 更重要的是, 对于每个 XUV 激发脉冲可以得到它的一个能量谱的快照记录(Snapshot Recording). 根据目前的技术和所能达到的工艺水平, 可以制作单个直径 100mm 的 MCP. 通过选择合适的 MCP 制作材料和加工工艺, 以及选择合适的偏转电极和 MCP 的几何尺寸与放置位置, 其位置分辨率可以达到 $\sim 0.1\text{mm}$, 对应的能量分辨率 $\sim 0.1\text{eV}$.

为了测量 XUV 的时间结构, 根据其能量的不同, 可以选择不同的惰性气体或氢原子作为光电子产生介质. 例如, 对于 $\hbar\omega_x = 90\text{eV}$ 的 XUV 光子(ω_x 为角频率), 若选用 Kr 作为工作介质, 其 4p 电子的电离能 $W_b = 14\text{eV}$, 则光电子的初始动能 $W_i = \hbar\omega_x - W_b = 76\text{eV}$. 在实际测量时, 为了正确地实现激光与 XUV 之间的交叉关联, 在时间上 XUV 脉冲波包应该调节到激光脉冲下降沿或上升沿适当位置, 即最佳测量点附近, 该点在下文介绍.

3. 理论计算

本文依据 Ge 在文献 [16] 中为测量阿秒和飞秒 XUV 超短脉冲时间结构建立的理论模型和相关的传输方程进行计算.

对于飞秒和亚皮秒时间宽度的激光脉冲, 电场可以表示为 $E_L(t) = E_a(t)\cos(\omega_L t + \Phi)$, 其中 $E_a(t) = E_0 F(t)$, E_0 为最大值, ω_L 为激光角频率. 载波包络 $F(t)$ 可以用高斯型函数表示, 如 $F(t) = \exp(-4\ln 2 \cdot t^2/\tau^2)$, $t = 0$ 时为最大值 1, τ 为激光脉冲时间宽度(Full Width at Half Maximum, FWHM). 由此可以得到光电子在激光电场振荡周期内的平均动能 U_p (即质动能, Ponderomotive Energy):

$$U_p(t) = e^2 E_a^2(t) / 4m_e \omega_L^2 = U_0 F^2(t), \quad (1)$$

式中 U_0 为 $t = 0$ 时刻的最大值, e 和 m_e 分别为电子的电荷和质量. 计算所用的激光波长为 750nm, 焦点处均匀的激光强度(能量密度)为 $S = 4 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$, 此时 $U_0 = 2.1\text{eV}$. 由于激光脉冲长度远大于激光振荡周期($T = 2.5\text{fs}$), 激光的载波-包络相位 Φ 并不重要, 可设 $\Phi = 0$.

设 $\theta = 90^\circ$ 方向上测量得到的光电子能谱(不同

能量处单位能量内探测到的光电子总数)为 $n(W)$, 则未知 XUV 脉冲的时间结构可以用以下方程组计算:

$$\begin{cases} W = W_i - 2U_0 F^2(t), \\ f(t) = -8U_0^2 F^3(t) \frac{dF(t)}{dt} \frac{dn(W)}{dW}. \end{cases} \quad (2)$$

从以上方程组的第 1 式(W 为能谱位置)解出时间变量 t , 代入第 2 式计算出应该时刻入射 XUV 的强度值 $f(t)$. $f(t)$ 是一个较为复杂的函数, 它与 U_0 的平方、激光包络形状函数 $F(t)$ 的三次方、 $F(t)$ 的时间微商和光电子能量微分谱 $dn(W)/dW$ 有关.

在 $\theta = 0^\circ$ 方向上测量得到的光电子能谱可以分成两部分, 即能量大于 W_i 和小于 W_i . 这两部分都包含了待测量 XUV 的时间结构信息. 如果取大于 W_i 部分, 则待测 XUV 脉冲的时间结构可以从以下方程组计算:

$$\begin{cases} W = W_i + 2U_0 F^2(t) + \sqrt{8U_0 W_i} F(t), \\ f(t) = \mathcal{A} [4U_0 \sqrt{8U_0 W_i} F(t) + 8U_0 W_i] \times F(t) \frac{dF(t)}{dt} \frac{dn(W)}{dW}. \end{cases} \quad (3)$$

上式与 (2) 式类似, 但决定时间变量的方程比 (2) 式复杂, 不仅与 $F(t)$ 的平方有关, 还与光电子的初始动能 W_i 有关. $f(t)$ 计算式的第 1 个因子由两部分组成, 第 1 部分与 $F(t)$ 有关, 第 2 部分与时间变量无关. $f(t)$ 还与激光包络 $F(t)$ 的一次方、 $F(t)$ 的时间微商和光电子能量微分谱 $dn(W)/dW$ 直接有关.

(2) 式和 (3) 式即为从光电子能谱计算 XUV 时间结构的传输方程^[16]. 从 $\theta = 90^\circ$ 和 0° 两种情形的测量来看, 要得到未知 XUV 的时间结构 $f(t)$, 关键是要测量光电子的能谱 $n(W)$, 并计算它的能量微分谱 $dn(W)/dW$. 对不同的 θ 角和产生时刻 t , 可以方便地从理论上计算出光电子的最终动能 $W_f(t, \theta)$, 如下式所示:

$$\begin{aligned} W_f(t, \theta) &= W_i(t) + 2U_p(t) \sin^2(\omega_L t) \cos 2\theta \\ &+ \sqrt{8U_p(t) [W_f(t) - 2U_p(t) \sin^2(\omega_L t) \sin^2 \theta]} \\ &\times \sin(\omega_L t) \cos \theta. \end{aligned} \quad (4)$$

根据激光波长、强度和 XUV 脉冲结构(强度或 XUV 光子数随时间的变化), 以及一定的能量间隔(Energy Bin)等参数, 可以在理论上用 (4) 式计算出光电子的能谱. 图 2—图 4 是有关计算的结果.

对于 90eV 能量的 XUV 光子激发 Kr 原子的 4p 电子,图 2(a)是在 $\theta = 90^\circ$, 激光波长 750nm, 激光脉冲宽度 100fs (FWHM), 激光强度 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 能量间隔 0.2eV/Bin, XUV 脉冲宽度 15fs (FWHM), 间隔 30fs 的信号 $f_0(t)$ 条件下, 根据(4)式计算得到的光电子能谱 $n(W)$ 和能量微分谱 $dn(W)/dW$. 此时, (4)式简化为 $W_{90} = W_i - 2U_0 F^2(t) \sin^2(\omega_L t)$, 光电子能量只有下移, 在 71.8—76eV 之间, 动态范围较小. 为了了解传输方程在较大时间范围内的行为, 取信号存在的时间(0—600fs)远大于激光脉冲宽度. 因此, 在较大时间值 t 处, $W_{90} \approx 76\text{eV}$, 大量光电子将堆叠在能量为 76eV 的能谱位置(图中在 75.9eV 处, 因为计算能谱时取 Bin 道中心, 下同). 在能量为 75.9eV 处, $n(W)_{\max} = 712.5 (1/\text{eV})$ $[dn(W)/dW]_{\max} = 3486.6 (1/\text{eV}^2)$. 图 2(b)的底部是信号 $f_0(t)$, 箭头所指处是由方程组(2)第一式所确定的、 $dW(t)/dt$ 的绝对值具有最大值的点, 即 $d^2W(t)/dt^2 = 0$ 所对应的时间点. 此点附近 $dt/dW(t)$ 的绝

对值最小, 因此对于一定带宽的 XUV, 此点附近计算得到的 $f(t)$ 具有最小的、由 XUV 能量带宽造成的时间不确定性, 即所谓的最佳测量点. 图 2(b)中 $k = 1, 2, 3$ 对应的三条点线, 是在相同的激光强度 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 下, 分别用不同波长(532, 750, 1064nm)的激光和能量间隔(0.2, 0.2, 0.6eV)下计算得到的 $f(t)$. 从图中可以看出, 在要求较高的谱仪能量分辨率和较小能量间隔的条件下, 对于不同的激光波长, $f(t)$ 重现了 $f_0(t)$ 的第 1 个脉冲的形状和幅度. $f(t)$ 相对于 $f_0(t)$ 的时间偏移(temporal shift)很小, 特别是对于 750nm 波长的激光, 部分展现了第 2 个脉冲的形状和幅度. 一般地说, 对于输入信号, 输出信号具有较小失真的区域称为有效时间测量范围或量程. 计算发现有效时间测量范围与激光波长、激光强度和激光脉冲宽度等参数有关. 结合图 2(a) 和 (b) 可以看出, 图 2(a) 中能谱曲线 $n(W)$ 的斜坡对应 $f(t)$ 中的一个脉冲.

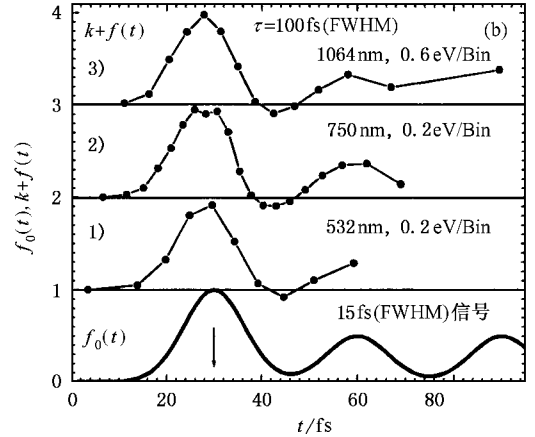
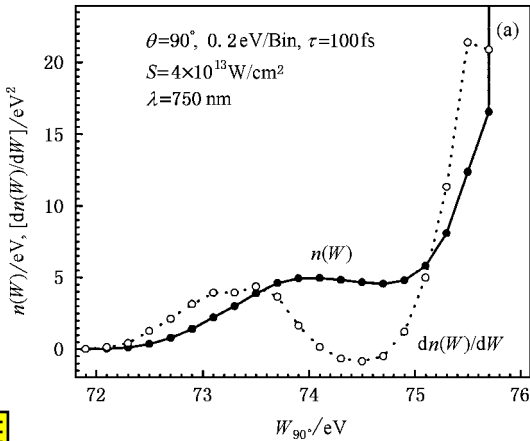


图 2 (a)宽度为 15fs (FWHM) 间隔 30fs 的 XUV 脉冲信号 $f_0(t)$ 在 $\theta = 90^\circ$, 激光脉冲宽度 100fs (FWHM), 强度 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 能量间隔取 0.2eV 时计算得到的光电子能谱 $n(W)$ (圆点) 微分谱 $dn(W)/dW$ (圆圈). (b) XUV 脉冲信号 $f_0(t)$ (粗实线), 在 $\theta = 90^\circ$ 和用不同激光波长计算得到的时间结构 $f(t)$ (圆点)

图 3(a) 和 (b) 所示的结果是在 $\theta = 0^\circ$ 时由 (4) 和 (3) 式计算得到的, XUV 能量和激光参数与图 2(a) 和 2(b) 相同. 此时 (4) 式简化为 $W_{0} = W_i + 2U_0 F^2(t) \times \sin^2(\omega_L t) + \text{sqr}(8U_0 W_i) F(t) \sin(\omega_L t)$, 不同时刻产生的光电子的能量不仅有下移, 还有上移. 由于 $W_i \gg U_0$, 能量基本上对称地分布在 $W_i + 2U_0 F^2(t)$ 周围. 但在 $t = 0$ 附近, $W_i + 2U_0 = 80.2\text{eV}$, 光电子能量将在 44.5—115.9eV 之间, 动态范围较大. 计算时, 只取能量上移的那部分能谱, 即 76—115.9eV 之

间的光电子, 并且取信号存在的时间(0—600fs)远大于激光脉冲宽度. 因此, 在较大时间值 t 处, $W_{0} \approx 76\text{eV}$, 大量光电子仍将堆叠在能量为 76eV 的能谱位置. 此处 $n(W)_{\max} = 2.28 (1/\text{eV})$ $[dn(W)/dW]_{\min} = -56.2 (1/\text{eV}^2)$. 谱仪的能量分辨率要求比 $\theta = 90^\circ$ 时的情形低, 能量间隔也较宽(对于波长为 532, 750, 1064nm 的激光, 能量间隔分别为 1.3, 1.5, 3.0eV), 这些特点有利于实验测量. 图 3(b) 与图 2(b) 的重要区别是, 图 3(b) 中 $f(t)$ 相对于 $f_0(t)$ 有明显系统性的时间和幅度偏移. 对于这些偏移, 可以在实际

测量和计算过程中加以修正. 总体上, $f(t)$ 的幅度和形状在量程范围内重现了原始信号 $f_0(t)$, 这是进

行实际测量的基础.

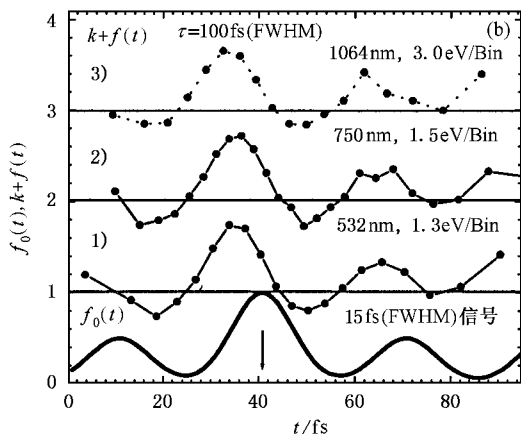
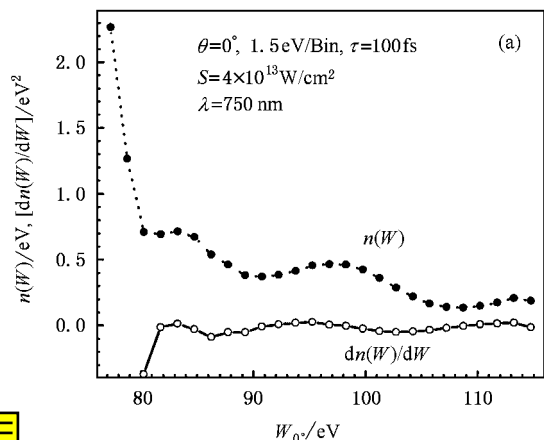


图3 (a) 对于宽度为 15fs (FWHM) 间隔 30fs 的 XUV 脉冲信号 $f_0(t)$, 在 $\theta = 0^\circ$ 激光脉冲宽度 100fs (FWHM), 波长 750nm, 强度 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 能量间隔取为 1.5eV 时计算得到的光电子能谱 $n(W)$ (圆点), 微分谱 $dn(W)/dW$ (圆圈). (b) XUV 脉冲信号 $f_0(t)$ (粗实线) 在不同激光波长时计算得到的时间结构 $f(t)$ (圆点)

从上述计算结果表明, 100fs 甚至更短时间宽度的激光脉冲可以用来测量 XUV 的时间结构. 但是, 入射 XUV 的能量带宽会引起上述计算结果的时间不确定性. 图 4(a) 是 $\theta = 0^\circ$ 时, 由 $\Delta t = \Delta W [dW(t)/dt]$ 计算得到的、对应于 XUV 单位带宽 $\Delta W = 1\text{eV}$ 和不同激光脉冲宽度 τ 的时间不确定性 (fs). $\tau = 100\text{fs}$ 和 400fs 两条曲线各自的最低点, 对应上文提到的最佳测量点, 分别在图 2(b) 和图 3(b) 中用箭头所示. 实际测量时, 待测 XUV 脉冲在时间上应该预先调节到这些点附近. 对应于 $\tau = 100\text{fs}$ 和 400fs 的激光脉冲, 1eV 的 XUV 能量带宽所对应 $f(t)$ 的时间不确定性的最小值分别约为 2fs 和 7fs, 这对于十几

fs 或几十 fs 的 XUV 脉冲的测量, 在实验上是可以作为误差来处理的. 图 4(a) 中的阴影面积示意用不同宽度激光脉冲的有效时间测量范围. 激光脉冲时间越宽, 量程越大, 但时间不确定性 (误差) 也越大. 因此, 对于不同时间宽度的 XUV 脉冲, 可以根据实际要求仔细计算最佳的激光脉冲宽度和激光强度. 图 4(b) 是对于 400fs 激光脉冲宽度 (FWHM), XUV 脉冲宽度为 50fs (FWHM) 和 100fs 间隔的信号 $f_0(t)$, 计算得到不同激光波长情况下的 $f(t)$. 可见, 在此激光脉冲宽度下, 在量程范围内几乎完全重建了原始信号的幅度、时间、结构等信息 (需经过适当的修正).

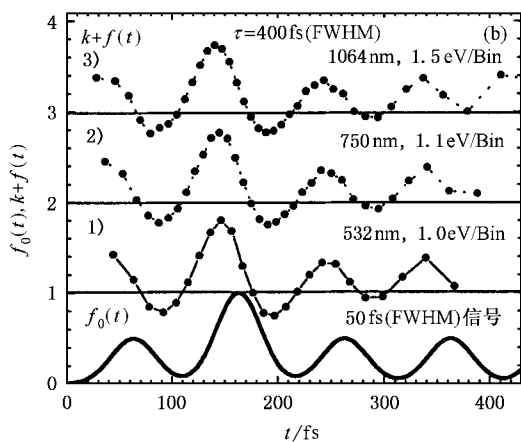
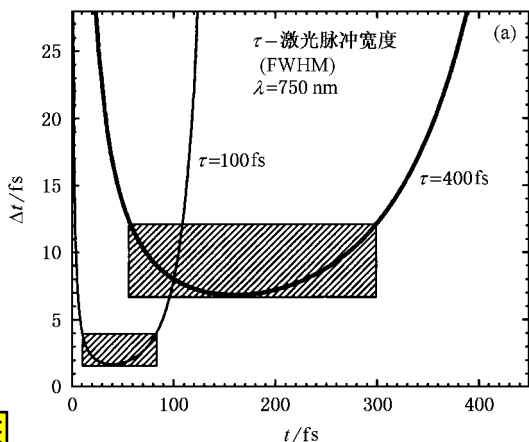


图4 (a) 在 $\theta = 0^\circ$ 时对应于 1eV 带宽 XUV 的时间不确定性 (误差) Δt . (b) 对于宽度 50fs (FWHM) 和 100fs 间隔的 XUV 脉冲信号 $f_0(t)$ (粗实线) 在 $\theta = 0^\circ$ 和不同激光波长时计算得到的 $f(t)$ (圆点)

4. 讨 论

原子中的电子在激光强电场作用下会发生电离,同时强激光电场导致高次谐波辐射产生(High-Order Harmonic Generation, HHG)^[17],这些对于光电子测量的本底会有影响,其影响程度主要取决于激光强度和激光脉冲时间宽度等因素.对于 HHG,最高次谐波辐射的截止能量约为 $\hbar\omega_{\max} = W_b + 3.17U_0$. 因此,对于本文计算所用的激光强度,即 4

$\times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\hbar\omega_{\max} = 20.7 \text{ eV}$,它远小于 W_i ,所以可以忽略介质高次谐波辐射对 $W_i (= 76 \text{ eV})$ 以上能量的光电子能谱的影响.

表 1 列出了与常用惰性气体中性原子及 I 价态离子相对应的的电离能 W_b 、发生电离时的激光强度阈值等数据,其中可产生的最高次谐波辐射数据取自文献 [18]. 对于中性的 Kr 原子 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的激光强度远小于电离阈值 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,因此场致电离电子对光电子谱的影响可以忽略.

表 1 与常用惰性气体中性原子及 I 价态离子相对应的的结合能 W_b 、发生电离时的激光强度,可产生的最高次谐波辐射等数据

气体种类	中性原子 W_b /eV	I 价离子 W_b /eV	中性原子电离激光 强度阈值(W/cm^2)	I 价离子电离激光 强度阈值(W/cm^2)	中性原子 最高次谐波	I 价离子 最高次谐波
He	24.6	54.4	1.5×10^{15}	3.5×10^{16}	199	4295
Ne	21.6	41.0	8.7×10^{14}	1.1×10^{16}	119	1365
Ar	15.8	27.6	2.5×10^{14}	2.3×10^{15}	41	197
Kr	14.0	24.4	1.5×10^{14}	1.4×10^{15}	27	187
Xe	12.0	21.2	8.3×10^{13}	8.1×10^{14}	17	113

除上述可以忽略的电离效应和高次谐波辐射外,阈上电离(Above-Threshold Ionization, ATI)^[19-21]可能对实验测量的本底有贡献.对于激光强度为 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和波长 750 nm ,时间宽度 7 fs 的激光脉冲,在 90° 方向用飞行时间法测量光电子能谱的实验结果^[1]表明,ATI 引起的本底很小.虽然用几十飞秒或亚皮秒这种较大时间宽度的脉冲激光会增加 ATI 的影响,但在实验上可以通过从光电子谱中扣除本底谱的方法消除这种影响.

另一个值得注意的问题是,在亚皮秒时间宽度的激光脉冲或时间测量范围较大的情况下,要求在较大的空间范围内,使较高能量的光电子在激光脉冲离开作用区前始终处于空间均匀的电场中.例如, 100 eV 的电子,如果没有任何外场作用,在 200 fs 时间内将直线飞行 $1.2 \mu\text{m}$. 对于 $\theta = 0^\circ$ 的测量,只有 $t = 0$ 时刻附近产生的光电子最终的动能能达到 100 eV ,并且必须经历不断的加速和减速过程.因此,在当前 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的激光强度下,几十微米的激光束斑能够保证 100 eV 以下能量的光电子始终处于空间均匀的激光电场中.

5. 总 结

XUV 的时间结构可以采用线性极化的超短脉

冲激光,由 XUV 激发产生的,在 $\theta = 90^\circ$ 或 0° 方向上测量得到的光电子能量微分谱数据重建.用微通道板位置分辨电子能量谱仪测量光电子的能量或飞行时间,谱仪的能量分辨率和能量间隔是测量及计算能谱时的两个重要参数.要求待测的 XUV 有窄的能量带宽,并且在测量前,设法调节 XUV 脉冲定位于激光脉冲上升或下降沿的最佳测量点所对应的时间值附近.计算表明, $\theta = 90^\circ$ 测量要求很高的谱仪能量分辨率和非常小的能量间隔,而 $\theta = 0^\circ$ 测量对谱仪能量分辨率的要求相对要低,能量间隔较宽,测量范围也更大,因此一般采用 $\theta = 0^\circ$ 测量.增加激光脉冲时间宽度,可以增大测量范围.以下是测量 XUV 时间结构的基本步骤.首先,选择合适的工作介质,并且控制激光脉冲的强度和脉冲宽度.其次,在合适的能量间隔和粗略设定的 XUV 脉冲宽度和时间结构下,从理论上计算光电子能谱,并通过能量微分谱推导出相应的时间结构,以此进一步优化实验参数.第三,用高分辨率的谱仪,在实验上测量光电子能谱和实验本底谱.第四,计算扣除本底后光电子谱的能量微分谱,并由此计算出未知 XUV 的时间结构.重复上述四步过程,不断调整有关的实验参数,最后得到一个高品质的光电子能谱和相对应的高分辨率的 XUV 时间结构.

上述测量 XUV 时间结构的方法和实验技术, 有较宽的时间测量范围和潜在的高分辨率, 其基本原理同样适用于对更高能量的 x 射线的测量, 这对于研究与原子运动有关的超快速测量技术有重要的意义. 在大时间范围内测量 XUV 或 x 射线时间结构技术的实现, 提供了实时观测超快速化学反应和生命

物质运动过程, 以及制作分子和原子电影的实验方法和途径.

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. 感谢何海萍进行大量的计算和讨论.

- [1] Drescher M *et al* 2001 *Science* **291** 1923
 [2] Hentschel M *et al* 2001 *Nature* **414** 509
 [3] Drescher M *et al* 2002 *Nature* **419** 803
 [4] Itatani J *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173903
 [5] Kitzler M *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 173904
 [6] Chen B Z 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 674 (in Chinese) [陈宝振 2002 物理学报 **49** 674]
 [7] Wu C Y and Gong Q H 2001 *Chin. Phys.* **10** 814
 [8] Wu J H and Yan J M 2003 *Chin. Phys.* **12** 1390
 [9] Bucksbaum P H and Merlin R 1999 *Solid State Commu.* **111** 535
 [10] Lindenberg A M *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 111
 [11] Zholents A A and Zolotarev M S 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 912
 [12] Schoenlein R W *et al* 1996 *Science* **274** 236
 [13] Adams B 2001 *Nucl. Instr. Meth. A* **467** – **468** 1129
 [14] Constant E *et al* 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3870
 [15] Ruggieri D J 1972 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS – **19**(3) 84
 [16] Ge Y C 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 349
 [17] L'Huillier A *et al* 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
 [18] Sergej L V 2003 *Controlling Laser High-Order Harmonic Generation Using Weak Counter-Propagating Light*, a dissertation submitted to the Department of Physics and Astronomy, Brigham Young University
 [19] Paulus G G *et al* 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
 [20] Grasbon F *et al* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 173003
 [21] Milošević D B *et al* 2003 *Optics Express* **11** 1418

Direct measurement of the temporal structure of narrow bandwidth femtosecond XUV using ultra-short laser via differential photoelectron energy spectrum

Ge Yu-Cheng[†] Li Yuan-Jing Kang Ke-Jun

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

(Received 21 June 2004 ; revised manuscript received 20 October 2004)

Abstract

A method is introduced to directly measure the temporal structure of femtosecond XUV which has a narrow bandwidth using sub-picosecond duration laser. Calculation shows that such a temporal structure can be reconstructed from the differential photoelectron energy spectrum excited by XUV or x ray, modulated by a laser field and measured at 90° or 0° with respect to the linear laser polarization. The effectiveness and nonlinearity of the method are investigated. Energy resolution and $\text{bir}(s)$ are important parameters for measurement and calculation. The method has a broad temporal measurement range and can be used for researches of dynamic processes associated with atomic motions.

Keywords : ultra-fast measurement, ultra-short pulse laser, temporal structure of extreme ultra-violet, differential photoelectron energy spectrum

PACC : 3365, 3280F, 3280, 3365C

[†]E-mail : gzyc@sina.com