

双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展

刘灿东 贾正茂 郑颖辉 葛晓春 曾志男 李儒新

Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field

Liu Can-Dong Jia Zheng-Mao Zheng Ying-Hui Ge Xiao-Chun Zeng Zhi-Nan Li Ru-Xin

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 65, 223206 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223206

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223206>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

[Enhancement of high-order harmonic generation from \$H_2^+\$ in near plasmon-enhanced laser field](#)

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

[Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields](#)

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

[Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field](#)

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

[Interference effect in the photodetachment from \$H^-\$ ion in a few-cycle laser pulse](#)

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

[Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields](#)

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动的原子的分子过程

双色场控制与测量原子分子超快电子动力学过程的研究进展*

刘灿东 贾正茂 郑颖辉 葛晓春 曾志男[†] 李儒新[‡]

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

(2016年9月14日收到; 2016年10月17日收到修改稿)

超短超快激光脉冲的出现为人们探索原子分子中超快电子动力学过程提供了强有力的工具. 阿秒脉冲和强激光脉冲电场整形技术能够获得电子波包在亚飞秒时间尺度的动力学信息, 发展出了一系列阿秒超快光谱学技术, 如阿秒条纹相机、阿秒瞬态吸收谱等, 成功地应用于原子、分子和固体中电子运动的探测. 其中双色激光场就是通过电场整形技术实现电子相干运动控制和探测的一种重要手段, 本文综述了中科院上海光机所强场激光物理国家重点实验室近几年来在双色场控制与测量原子分子超快过程方面的研究工作.

关键词: 阿秒脉冲, 双色场, 超快电子动力学

PACS: 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.65.223206

1 引言

电子的运动与量子状态决定了物质的基本特性. 例如原子分子中的电子结构决定了其基本的物理化学性质, 化学反应的发生、生物体系的神经信号传递与半导体材料中的信号处理则与这些电子的运动密切相关, 因此控制与探测原子分子中的超快电子动力学过程对理解化学、生命科学与材料科学的物理学本质具有重要意义. 当飞秒量级的超短脉冲出现时, 由于其脉冲宽度与化学反应过程中原子核的运动时间尺度相当, 这使得飞秒激光成为研究分子化学反应动力学的有力工具^[1]. 进一步, 由于原子分子中电子运动的时间尺度通常都在百阿秒量级($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), 这就需要更短的光脉冲和超快光谱学技术才能实现电子运动的时间分辨测量. 阿秒脉冲的产生为这一目标提供了重要工具, 给超快探测领域注入了新鲜的血液, 并极大地推动了相关研究的发展, 渐渐形成了一门新的学

科——阿秒科学^[2-4].

目前, 气体高次谐波产生 (high order harmonic generation, HHG) 已经成为实验上获得极紫外 (XUV) 阿秒脉冲的标准方法. HHG 的物理过程通常可以用“三步”模型来简单描述: 1) 原子在驱动激光场作用下发生隧穿电离; 2) 隧穿出的自由电子进一步在后续光场的作用下加速获得动能; 3) 当激光电场反向时, 部分电子被引导回到原子核附近发生复合, 辐射出高能光子, 即为高次谐波. 从光谱分布上看, 高次谐波谱表现出典型的平台区加截止区的结构, 其宽带的 XUV 光谱足以产生超短的阿秒脉冲. 从时域上看, 上述“三步”过程 (电离-加速-复合过程) 每半个光周期重复一次, 导致多光周期驱动激光很自然地产生阿秒脉冲链 (attosecond pulse trains, APT). 但是, 超快电子动力学过程的探测需要单阿秒脉冲 (isolated attosecond pulse, IAP). 因此, 为了能够从时域上选择出单一的阿秒发射, 人们提出了各式各样的光场整形“门”

* 国家自然科学基金 (批准号: 11127901, 61521093 11227902, 11404356, 11274325, 11574332, 1151101142)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2011CB808103)、上海市扬帆计划项目 (批准号: 14YF1406000)、上海市科委科技基金 (批准号: 12QA1403700)、上海光学精密机械研究所青年特聘研究员项目 (批准号: 1401561J00) 和中国科学院青年创新促进会项目资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zhinan_zeng@mail.siom.ac.cn

[‡] 通信作者. E-mail: ruxinli@mail.shcnc.ac.cn

技术^[5-6]. 例如,“振幅门”方案利用周期量级激光脉冲在不同的半光周期内产生的HHG的最大光子能量不同,通过光谱滤波方法选择出高次谐波截止区附近的光谱,实现单个阿秒脉冲的产生^[7].这通常要求驱动激光的脉宽短于两个光周期,且具有稳定的载波包络相位(carrier envelope phase, CEP).2008年,Goulielmakis等使用这种方案在1.5个光周期的驱动激光条件下成功地获得了脉宽短至80 as的单阿秒脉冲^[8].基于该原理,通过增加一个倍频场实现电场整形,可以大幅提高HHG的连续谱的光谱宽度,使其足以支持脉冲宽度小于一个原子单位的阿秒脉冲产生^[9-11].“电离门”方案利用强激光脉冲的过度电离效应,在激光脉冲前沿很窄的时间窗内产生单阿秒脉冲,在氙气中获得了能量2.1 nJ,脉宽155 as的单阿秒脉冲^[12].“偏振门”方案利用高次谐波辐射对驱动激光椭圆偏度的强烈依赖关系,通过调控驱动激光的偏振态使其从圆偏振变化到线偏振再变到圆偏振,从而在时间宽度很短的线偏振窗口部分产生单阿秒脉冲.这个方案首次于1994年被提出^[13],并于2006年在实验上成功实现,获得了130 as的单阿秒脉冲^[14].“双光学门”方案则利用偏振门叠加倍频场实现光场整形产生单阿秒脉冲^[15].这种方法可以降低对驱动激光脉宽的要求,在多光周期激光脉冲条件下也可以产生单阿秒脉冲^[16].“时空门”方案利用了阿秒灯塔(lighthouse)效应^[17,18],在时间上旋转驱动光场的波矢方向,使得多光周期激光脉冲产生的阿秒脉冲链中的每一个阿秒脉冲具有不同的发射方向.这样只要保证相邻半光周期的波矢方向旋转角度大于阿秒脉冲自身的发散角,就可以在远场用空间滤波的方法选择出单阿秒脉冲.

为了进一步拓展阿秒超快测量技术的应用,目前关于阿秒脉冲产生的研究开始多样化发展,比如高重复频率的高次谐波/阿秒脉冲,圆偏振的阿秒脉冲,涡旋高次谐波/阿秒脉冲等.例如,由于剧烈的吸收导致缺少XUV波段的透射光学元件,阿秒脉冲的偏振态调控很难像红外/可见光那样用各种波片来实现.为了实现这个目的,人们提出了各种各样的方案.例如,利用分子环形电流态^[19]和He⁺的2p激发态^[20]作为产生介质,在分子介质中用周期量级的椭圆偏振光叠加一个太赫兹场^[21],或者采用相反旋转方向的双色圆偏振光等^[22].最近,Hickstein等^[23]在实验上使用了非共轴的一对反向旋转圆偏振光成功地产生了圆偏振阿秒脉冲.

从上述研究中可以看出,双色激光场与原子分子相互作用是实现超快控制和测量的一种重要手段,它既包含了光场的亚周期整形对电子运动的相干控制,也涵盖了抽运-探测的方法(其中一束光激发某个动力学过程,然后另一束光追踪超快时间分辨的演化).不同参数区域的双色光场有着不同的应用.例如,阿秒条纹相机技术即XUV+IR (infrared) 双色场的重要应用,它利用红外光辅助的阿秒光电离过程,通过扫描红外光脉冲与阿秒脉冲之间的相对时间延迟,得到一套条纹光电子谱,再利用一些反演算法,如FROG-CRAB等^[24],PROOF^[25],重建出阿秒脉冲的光谱相位和脉宽.如果所选的阿秒脉冲光谱宽度足够宽,它能够同时将不同量子态的电子电离出去,那么阿秒条纹光电子谱还可以用于揭示原子分子中不同壳层电子电离的相对时间延迟^[26-28].当阿秒脉冲能够同时激发出束缚态相干电子波包和连续态波包时,红外激光脉冲的进一步电离可以构成光电子干涉仪,实现束缚态电子运动的测量^[29].对于分子介质,阿秒脉冲能够通过单光子电离过程快速移除某个电子,使剩下的分子离子产生超快弛豫甚至解离过程.然后我们可以用另一束时间延迟的红外激光脉冲与分子离子相互作用,通过测量解离后的分子离子动能谱随延迟的变化,可以揭示出H₂和D₂分子光电离的电子局域化过程^[30],N₂O⁺高激发态下的电子-核非奥本海默近似的关联动力学过程^[31],苯基丙氨酸离子中的超快空穴密度变化过程^[32]以及H₂⁺相干振动核波包中复振幅的相位调制过程^[33]等.

除了分析光电子谱和离子谱以外,超快电子动力学的测量还可以通过全光学的方法实现.其中阿秒瞬态吸收光谱技术便是一种重要的测量手段,它通过测量延迟可控的双色场(XUV+IR)与物质作用后的吸收光谱获取超快动力学信息.2010年,Goulielmakis等^[34]首次利用阿秒瞬态吸收谱技术成功观测到了Kr⁺价电子的运动.随后这种技术被用于探测瞬时束缚态波包干涉效应^[35]、观测激发态的亚周期Stark移动^[36]以及揭示Fano吸收线型与时间依赖的偶极响应相位之间的联系^[37].近几年,人们对原子分子中的阿秒瞬态吸收谱技术从理论和实验上都进行了广泛的研究,加深了对这种技术的理解并取得了众多的结果^[38-41].从原子分子实验中建立起来的双色场超快测量技术在固体材料上也获得了很大的成功,Schultze等^[42]用阿秒

瞬态吸收光谱技术确定了硅中载流子注入引起的带隙减小和电子-电子散射的时间尺度上限. 利用超快强激光脉冲对固体材料中载流子的测量与控制对现代电子学发展将具有重要意义^[43].

本文综述了我们实验室近几年在双色场控制与测量原子分子超快过程方面的一些研究工作, 主要涉及阿秒脉冲的表征和应用, 以及超快电子的运动控制, 包括XUV/IR双色场方法测量原子分子激发态的复杂相干运动和寿命、阿秒脉冲载波包络相位以及光谱相位的光学表征, 以及THz/UV和MIR/IR双色场控制电子的超快运动.

2 束缚态相干电子波包的测量

宽带XUV阿秒脉冲激发原子分子可以产生局部的电子波包 (EWPs), 这种电子波包通常可以表示为多个定态量子态的相干叠加, 其时间演化与其包含的定态之间的能级差直接相关. 目前, 人们已经提出了各种技术来完全重建这种波包, 包括: 1) 阿秒瞬态吸收光谱技术; 2) 基于测量单次碰撞的高次谐波谱调制结构的全光学方法^[44]; 3) 使用啁啾阿秒脉冲产生的光电子谱调制信号^[45]; 4) 测量阿秒光电离的不对称性参数^[46,47].

当宽带的阿秒脉冲与原子分子相互作用时, 如果阿秒脉冲的中心光子能量在原子分子电离能附近, 阿秒脉冲可以激发出包含了一系列本征束缚态的相干电子波包. 由于包含了多个本征束缚态, 这种相干电子波包展现出复杂的运动过程, 这里采用单电子近似下的氢原子模型阐述如何测量这种束缚态相干电子运动. 假设一个宽带的阿秒脉冲与氢原子相互作用制备出包含了1s, 2p₀, 3p₀和4p₀态的相干电子波包. 这些定态可以分别由原子轨道 $\psi_1(\mathbf{r})$, $\psi_2(\mathbf{r})$, $\psi_3(\mathbf{r})$, 和 $\psi_4(\mathbf{r})$ 表示, 则相干电子波包可以描述为

$$\begin{aligned} \psi(\mathbf{r}, t) = & \alpha_1 \psi_1(\mathbf{r}) + \alpha_2 e^{-i\gamma(t)} \psi_2(\mathbf{r}) \\ & + \alpha_3 e^{-i\beta_3 - i\gamma(t) \frac{\Delta I_{13}}{\Delta I_{12}}} \psi_3(\mathbf{r}) \\ & + \alpha_4 e^{-i\beta_4 - i\gamma(t) \frac{\Delta I_{14}}{\Delta I_{12}}} \psi_4(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (1)$$

式中: α_i ($i = 1, 2, 3, 4$) 为第*i*个态的初始布居数, β_j ($j = 2, 3, 4$) 为初始相位, $\Delta I_{ij} = I_i - I_j$ ($i, j = 1, 2, 3, 4$) 为两个原子轨道*i*和*j*的能级差, $\gamma(t) = \Delta I_{12}t + \beta_2$ 为时间依赖的相位. 这里 I_i 为第

*i*个原子轨道的电离能. 为了简化符号, 方程(1)中的下标1, 2, 3, 和4分别代表了1s, 2p₀, 3p₀和4p₀态, 其中的指数项描述了波包的时间演化.

方程(1)描述的相干电子波包运动可以通过阿秒光电离过程来测量. 选取线偏振阿秒脉冲作为探测脉冲, 理论上通过求解含时薛定谔方程得到电子波包的时间演化^[48]. 将最终的波函数 $\psi(\mathbf{r}, t_f)$ 投影到原子系统的散射态 $\psi_{\mathbf{p}}^C(\mathbf{r})$ 上, 可以得到动量空间的概率幅 $a(\mathbf{p}) = \langle \psi_{\mathbf{p}}^C(\mathbf{r}) | \psi(\mathbf{r}, t_f) \rangle$. 对于具有类氢离子结构的原子, 其库仑势为 $V(r) = -Z/r$, $a(\mathbf{p})$ 可以写出解析表达式^[49]. 考虑到波函数的旋转对称性, 我们可以得到微分电离概率:

$$\begin{aligned} D(\mathcal{E}, \theta_p) &= \frac{\partial^2 P}{\partial \mathcal{E} \sin \theta_p \partial \theta_p} \\ &= 2\pi \sqrt{2\mathcal{E}} |a(\sqrt{2\mathcal{E}}, \theta_p, 0)|^2, \end{aligned} \quad (2)$$

式中 $\mathcal{E} = p^2/2$ 为光电子动能. 沿着阿秒探测光的偏振方向, 我们可以定义一个电离不对称参数 $A_d(\mathcal{E}) = D(\mathcal{E}, 0) - D(\mathcal{E}, \pi)$.

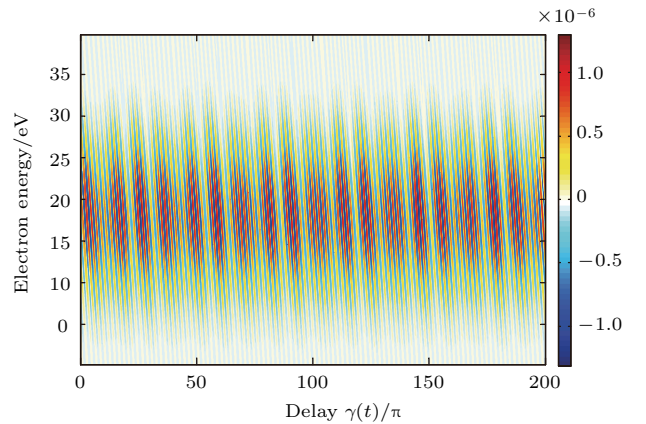


图1 微分电离不对称性参数 A_d , 作为电子能量和抽运探测时间延迟的函数^[48]

Fig. 1. Differential ionization asymmetry parameter, A_d , as a function of the electron energy and of the pump-probe temporal delay^[48].

我们假设抽运光制备了相干电子波包 $\psi(\mathbf{r}, t)$, 每个束缚态具有相等的布居数 $\alpha_i^2 = 1/4$, 随后用阿秒脉冲探测电子运动. 阿秒脉冲参数: 峰值强度 $I_0 = 1.0 \times 10^{12}$ W/cm², 傅里叶极限脉宽 $\tau = 130$ as, 中心光子能量 $\omega_0 = 36$ eV, 线性啁啾率 $\xi = 3$, 和载波包络相位 $\phi_0 = 0$. 通过扫描延迟, 我们可以计算出不同电子能量的电离不对称性参数 $A_d(\mathcal{E})$ 随时间延迟的变化, 如图1所示, 可以看到一系列倾斜的干涉条纹. 为了进一步提取图1中

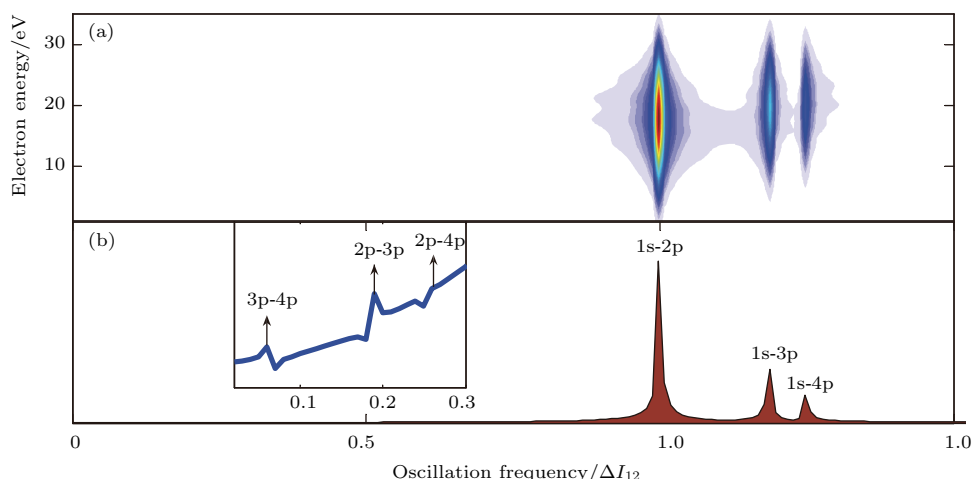


图2 (a) 二维量子拍频图, 对图1中每个电子能量沿着时间延迟轴做傅里叶变换得到; (b) 一维量子拍频图, 通过对(a)中纵轴积分得到, 插图为量子拍频信号在低振荡频率区域的放大^[48]

Fig. 2. (a) Two-dimensional quantum beats obtained from Fourier transform of the map shown in Fig. 1 along the delay axis at each electron energy; (b) one-dimensional quantum beats obtained by integrating panel (a) along the electron energy axis at each oscillation frequency, inset is the close-up of quantum beats signal in the region of low oscillation frequencies^[48].

包含的信息, 我们对每个电子能量的时间延迟轴做傅里叶变换, 得到二维频率能量图, 如图2(a)所示, 即不同电子能量位置的干涉条纹的频率特性。

显然, 傅里叶分析清晰地给出了三对原子轨道的量子拍频信号。为了突出量子拍频信号, 可以对图2(a)沿着纵轴方向积分, 得到一维振荡频率的函数, 如图2(b)所示, 三个主峰分别对应了1s-2p, 1s-3p, 1s-4p三对宇称相反的量子拍频。要想观测到相同宇称态之间的量子拍频, 要求其中一个态单光子电离产生的电子波包和另一个态双光子电离产生的电子波包的能谱有重叠。在图1所使用的探测阿秒脉冲参数下, 相同宇称态的量子拍频信号很弱。放大图2(b)中低振荡频率区域的曲线, 如图2(b)插图所示, 可以看到微弱的3p-4p, 2p-3p, 和2p-4p量子拍频信号。

阿秒脉冲电离相干电子波包 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 的过程可以理解为将波包包含的每个定态都激发到连续态上, 理论分析可以给出量子拍频强度 $Q_{1j} \propto \alpha_1 \alpha_j R_{1j}$ ^[48], 其中 R_{1j} 与探测光光谱和原子结构有关。利用这个简单表达式, 我们可以通过测量量子拍频的强度比来获得不同束缚态之间的相对布居数。进一步分析量子拍频信号, 用不同的滤波器选择单独的拍频峰, 然后逆傅里叶变换到时间域, 我们可以实现不同激发态寿命的测量。值得注意的是, 在测量激发态寿命时, 这种方法不需要知道探测阿秒脉冲和原子结构的相关信息^[48]。

3 阿秒脉冲的CEP效应

单个阿秒脉冲的产生与测量得益于CEP稳定的周期量级IR脉冲的发展^[3,4]。阿秒条纹相机技术是实现阿秒脉冲时域测量的重要手段。虽然阿秒条纹相机技术被证明适用于单周期阿秒脉冲^[14], 但是它无法提供阿秒脉冲的CEP信息。基于FROG-CRAB或者其他反演技术的重建算法可以获得阿秒脉冲的光谱相位, 但是其中有一个任意常数无法确定, 这对应了时域上阿秒脉冲的CEP无法测量。周期量级阿秒脉冲的CEP能够影响光电子发射的不对称性^[50], 但是这个效应要在阿秒脉冲的峰值强度大于 10^{14} W/cm²才能体现出来, 当前的阿秒实验技术尚无法达到如此高的聚焦光强。为了克服这个困难, 我们提出了一种观测阿秒脉冲CEP效应的新方案: 利用强IR脉冲辅助下的阿秒光电离过程, 保证IR脉冲的光强能够产生阈上电离 (above threshold ionization, ATI) 谱, 只要阈上电离产生的电子波包和阿秒条纹电子波包有重叠, 我们就可以观测到干涉现象, 阿秒脉冲的CEP信息就可以从干涉条纹位置读出。在这个过程中, IR脉冲产生的阈上电离自由电子充当了参考波包反映出阿秒脉冲CEP的变化。

我们选择氩原子作为相互作用介质, 采用的阿秒XUV脉冲参数为光强 10^{12} W/cm²、脉宽为250 as、中心光子能量36 eV, CEP为0, IR脉冲的参

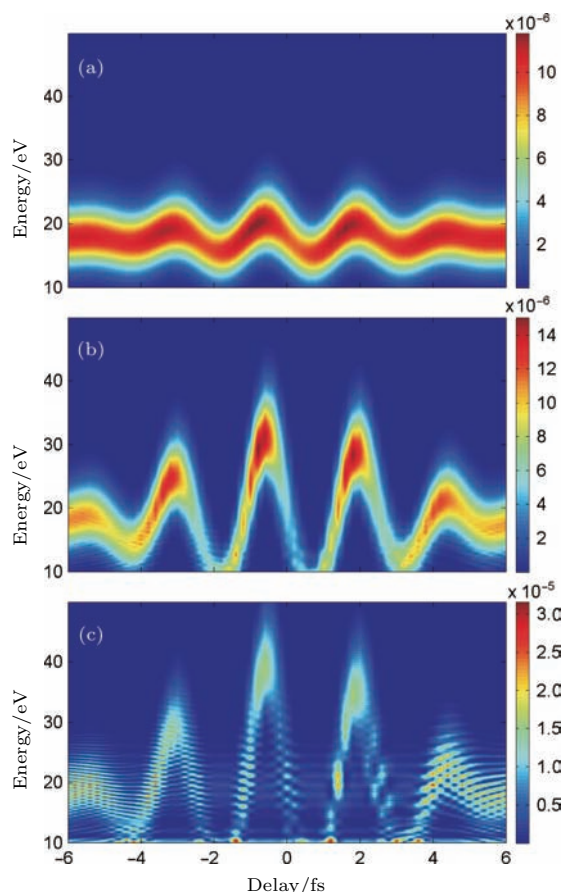


图3 三个不同IR脉冲光强下的阿秒条纹光电子谱 (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [51]

Fig. 3. Attosecond streaking photoelectron spectra generated for three different IR intensities: (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$; (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [51].

数为脉宽5 fs、中心光子能量1.63 eV. 通过直接求解含时薛定谔方程, 我们可以得到角度分辨的光电子谱. 图3给出了在三个不同IR脉冲光强下得到的沿着负 z 轴方向探测的阿秒条纹光电子谱: (a) $I_{\text{IR}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (b) $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 和 (c) $I_{\text{IR}} = 4.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. 计算中氩原子采用中心势模型, 它可以很好地描述3p价电子态 [51]. 图3(a)给出了在低IR脉冲光强下典型的阿秒条纹光电子谱图, 可以看到光电子能量的移动, 条纹移动轨迹直接对应了IR脉冲的矢势. 随着IR脉冲光强的增加, 条纹谱的振荡幅度增大. 当光电子能量朝着低能方向移动时, 可以看到小的调制, 如图3(b)所示. 进一步增加IR脉冲的光强, 从图3(c)中可以看到在整个延迟区域都有强烈的干涉结构, 干涉条纹的形状与具体的时间延迟数值有关.

光电子能谱的干涉调制结构与阿秒脉冲的载波包络相位CEP密切相关, 图4(a)给出了在零延迟下, 三个不同CEP阿秒脉冲产生的光电子能谱. 在低能区域($<10 \text{ eV}$), 电子谱能量峰的位置并不依赖于CEP. 在更高的能量位置($13 \text{ eV} < E < 30 \text{ eV}$), 电子谱能量峰的位置与CEP成线性关系, 呈现了 2π 的周期性, 如图4(b)所示. 这种调制结构和CEP的依赖关系可以理解为两个不同电离通道光电子谱干涉的结果. 一个是阿秒脉冲通过单光子电离产生的自由电子, 在IR场的作用下, 最终形成一个电子能量分布, 另一个

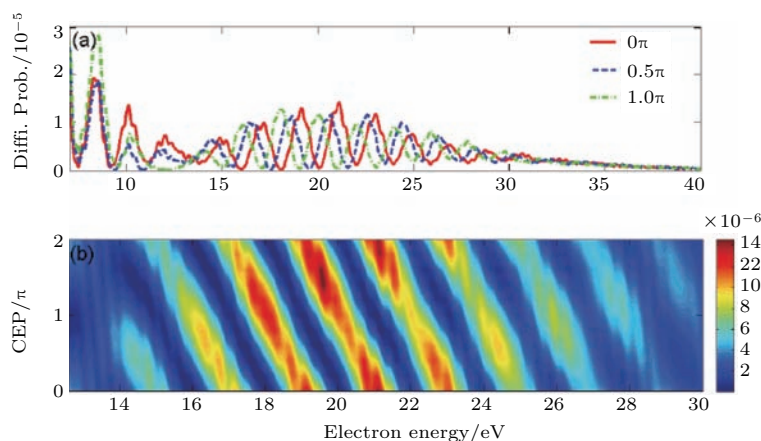


图4 (a) 零延迟下三个不同CEP阿秒脉冲产生的光电子谱, $\phi_{\text{XUV}} = 0$ (红色实线), $\pi/2$ (蓝色虚线), 和 π (绿色虚点线); (b) 阿秒脉冲CEP在 $[0, 2\pi]$ 范围内改变时产生的光电子能谱的干涉结构 [51]

Fig. 4. (a) Simulated photoelectron spectra for zero delay, for the CEPs $\phi_{\text{XUV}} = 0$ (red-solid line), $\pi/2$ (blue-dashed line), and π (green dashed-dotted line); (b) interference fringes as a function of the electron energy in the CEP range $[0, 2\pi]$ [51].

是强IR脉冲产生的阈上电离电子,这两个不同来源的电子波包的能量相同时,就会发生干涉.在图3(c)中所用的IR脉冲强度下,阈上电离电子能量可以达到 $10U_p$,其中 U_p 是IR场的有质动力势[51],这表明电子发生过重散射[52,53].图4(a)的能量调制结构对应于两个电子波包的时间延迟 $\delta t = 1.95$ fs,通过对阈上电离重散射电子波包的经典轨道分析,可以获得散射时刻为 $t_{\text{resc}} = 1.8$ fs[51].这两个时间符合得很好,进一步确认了双波包干涉物理图像.

这种干涉效应提供了一种测量阿秒脉冲CEP的方法:首先在低强度IR脉冲作用下获得传统的阿秒条纹光电子谱,用FROG-CRAB反演算法得到阿秒脉冲的光谱相位和IR脉冲的电场形状;然后增加IR脉冲的光强,得到有干涉结构的光电子谱,此时可以认为IR脉冲的电场形状维持不变.用第一步得到的阿秒脉冲光谱相位附加一个拟合参数,通过搜索计算寻找与高IR脉冲光强下测量的干涉结构达到最佳匹配的模拟结果,此时得到的拟合参数便是待测量阿秒脉冲的CEP.

4 阿秒脉冲光谱相位的光学表征

除了通过光电子谱的测量实现阿秒脉冲相位的测量,人们还提出了一些全光学的方法来表征阿秒脉冲的光谱相位.这些全光学方法只需要测量光谱,简化了实验过程,具有很大的优势.全光学方法通常都是建立在原位(*in situ*)测量概念上,其中阿秒脉冲的产生和测量纠缠在一起,但是它提供了高的探测效率和高的信噪比,这对高光子能量阿秒脉冲的测量尤其有利.最近,针对阿秒脉冲时空结构的光学测量方法在实验上获得成功[54].为了避免阿秒脉冲产生与测量的纠缠,我们提出了一种全光学方法测量阿秒脉冲相位的新方案[55].阿秒脉冲电离原子产生自由电子波包,在CEP稳定的IR脉冲作用下,产生的自由电子波包可以被引导回原子核附近,与基态波包发生干涉产生快速振荡的偶极矩,辐射出新波段的光谱,这里称作“碰撞发射谱”.这种发射谱的结构和形状与阿秒脉冲的啁啾密切相关,因此它提供了表征阿秒脉冲光谱相位的可能.

我们首先计算氦原子在XUV阿秒脉冲和IR飞秒脉冲组成的双色场作用下产生的碰撞发射谱.阿秒脉冲的参数为:峰值强度 10^{12} W/cm²,

傅里叶变换极限脉宽260 as,中心光子能量36 eV,线性啁啾率 $\xi = 0$.IR脉冲的参数为:峰值强度 6×10^{13} W/cm²,脉宽5 fs,中心光子能量1.63 eV,对应于760 nm波长.图5给出了随双色场延迟变化的碰撞发射谱,光谱能量范围为18—30 eV.图5中的黄色虚线给出了IR脉冲矢势的时间变化.从图中可以看出,碰撞发射谱只能在特定时间延迟位置产生,该位置对应于IR脉冲矢势的极值点附近,呈现周期性调制的特点,调制周期为IR脉冲光周期的一半.这种依赖于XUV-IR时间延迟的发射谱可以按照碰撞干涉的图像来理解.对于图5所使用的脉冲参数,电离过程主要来自阿秒脉冲,它通过单光子电离产生自由电子波包. IR脉冲主要控制已经电离出去的自由电子运动,因此在IR矢势极值点附近电离的电子获得最大的动量变化和能量移动,从而在自由电子回到原子核附近与基态电子波包干涉时,可以产生有效而高能的连续束缚态跃迁,辐射出碰撞发射谱.这一解释可以通过改变XUV阿秒脉冲的中心光子能量来确认,计算发现当XUV阿秒脉冲的中心光子能量增加大50 eV时,碰撞发射谱消失[55].这是因为当光子能量增加时,通过单光子电离产生的自由电子初始速度会增大,计算中所用的IR脉冲光强不足以将电子拉回原子核,所以无法产生碰撞发射谱.经典电子轨道分析可以更直观地理解碰撞发射谱的产生过程,分析结果表明相邻两个发射谱来源于两个不同的电子轨道分支,对应于两个相反的初始电子发射速度方向.

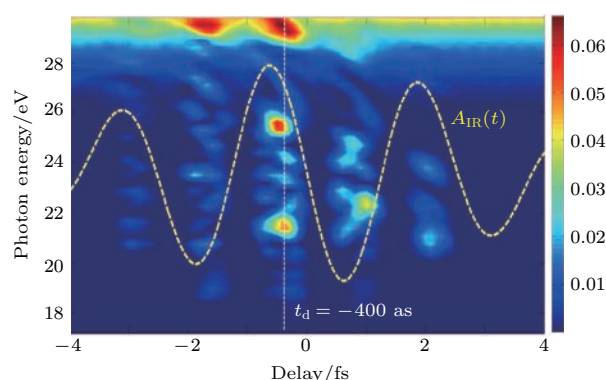


图5 改变双色场时间延迟,全量子模拟得到的氦原子在IR脉冲和阿秒脉冲联合作用下的碰撞发射谱,黄色虚线代表IR脉冲的矢势波形[55]

Fig. 5. Emission spectrum generated in helium by the combination of an IR pulse and an isolated attosecond pulse, vs. the temporal delay between the two pulses, calculated by using the full quantum simulations[55].

上述过程中一个很重要的结果是这种双色场产生的碰撞发射谱携带了阿秒脉冲光谱相位信息. 因为电离过程主要由阿秒脉冲的单光子电离决定, 它将阿秒脉冲的光谱相位信息映射到自由电子波包上, 当IR脉冲将电子波包引导回原子核与基态干涉产生碰撞发射谱时, 阿秒脉冲的光谱相位信息将会表现出来. 图6(a)给出了三个不同啾啾率XUV阿秒脉冲下产生的碰撞发射谱, 可以看到在低于10 eV和高于30 eV的光谱区域, 光谱形状不依赖于啾啾, 因为这两段光谱分别由IR和XUV脉冲各自单独产生. 但是, 在20 eV和30 eV之间的光

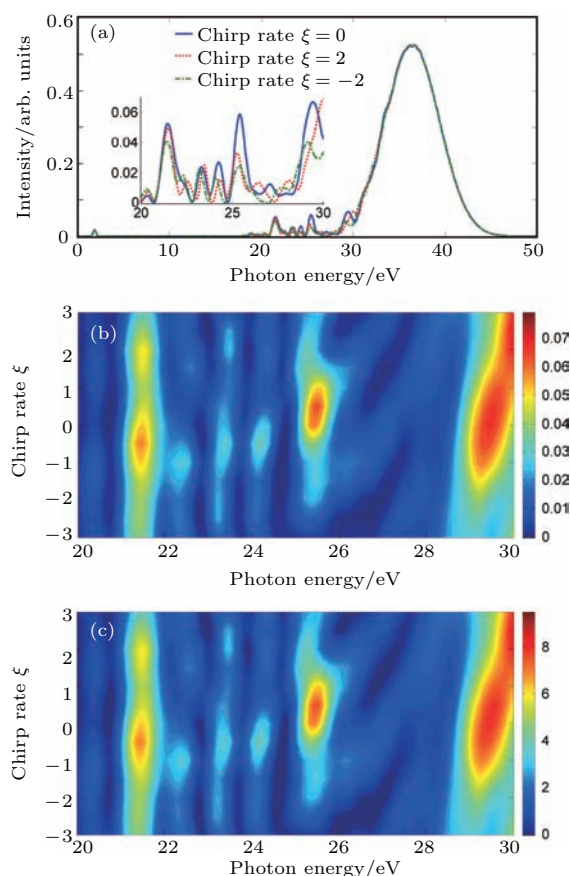


图6 (a) 比较在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 三个不同啾啾率的XUV脉冲产生的碰撞发射谱, 插图是20—30 eV处光谱曲线的放大; (b) 在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 单原子发射谱随着XUV啾啾率的变化; (c) 在固定XUV-IR延迟 $t_d = -400$ as下, 轴向的发射谱随着XUV啾啾率的变化^[55]

Fig. 6. (a) Comparison of the XUV spectrum calculated at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as for three different chirp rates of the XUV pulse. inset is a zoom of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as; (b) single-atom emission spectrum versus chirp rates of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as; (c) macroscopic on-axis emission spectrum versus chirp rates of the XUV pulse at the fixed XUV-IR delay $t_d = -400$ as^[55].

谱结构则强烈地依赖于阿秒脉冲的啾啾, 这提供了全光测量XUV光谱相位的可能性. 图6(b)给出了扫描线性啾啾率 $-3 \leq \xi \leq 3$ 得到的单原子发射谱变化情况. 众所周知, 宏观传播效应对最终的光谱有重要的影响^[56,57]. 完全模拟宏观的碰撞发射谱要求数值求解麦克斯韦方程, 其中单原子源项需要用三维含时薛定谔方程获得. 这种涉及到双重时间和空间尺度的模拟非常耗时, 为了控制计算量并且获得清晰的物理图像, 我们采用一维的传播方程计算轴向的发射谱, 而单原子源项依然用三维含时薛定谔方程计算^[55]. 假设IR脉冲采用松聚焦方式, XUV脉冲的束腰为20 μm , 气体靶长度为1 mm、压强为10 Torr. 图6(c)给出了考虑宏观效应后扫描线性啾啾率 $-3 \leq \xi \leq 3$ 得到的轴向发射谱变化情况. 比较图6(b)和图6(c)可以发现, 宏观传播效应对发射谱的结构影响很小. 线性啾啾率和发射谱结构具有一一对应的关系, 即不同的线性啾啾率产生的发射谱形状也不同, 这从理论上保证了用碰撞发射谱提取阿秒脉冲啾啾特性的惟一性.

5 太赫兹 (THz) 场控制电子局域化

在化学反应过程中, 控制化学反应途径获得特定的最终产物引起了人们很大的兴趣^[58], 其中一个重要的目标是找到光化学反应中选择性断裂和形成化学键的方法. 随着现代激光技术的出现与发展, 尤其是CEP稳定的周期量级脉冲和单阿秒脉冲的产生, 一系列的相干控制方法被相继提出, 控制分子解离过程中的电子局域化是其中的一个研究重要内容. 与单个激光脉冲的方法相比, 双脉冲被证明在通道选择和提高电子局域化方面具有更好的效果^[59-61]. 基于双色场方案, 我们提出了一种有效增强分子解离过程中电子局域化概率的方案: 选择 H_2^+ 作为模型分子, 用超短紫外 (UV) 脉冲将基态电子态 $1s \sigma_g$ 激发到解离态 $2p \sigma_u$ 上, 然后用强THz场引导电子在两个核之间运动^[62].

由于计算规模的限制, 模拟中我们考虑简化的二维 H_2^+ 模型 (一维电子运动, 一维核振动), 通过直接求解非波恩-奥本海默 (NBO) 近似的含时薛定谔方程, 得到耦合的电子和核波函数. H_2^+ 解离的两个通道定义为

$$P_{\pm} = \int_{10.0}^{R_{\max}} dR \int_{\pm R/2.0-5.0}^{\pm R/2.0+5.0} dz |\varphi(z, R, t_{\text{end}})|^2, \quad (3)$$

式中 $R_{\max}$ 对应于计算中设置的核间距的边界最大值, $\varphi(z, R, t_{\text{end}})$ 是系统最终的电子-核耦合波函数. 激发电子波包到解离态 $2p \sigma_u$ 的 UV 脉冲参数为: 波长 228 nm, 光强 $5.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 脉冲宽

度 7.9 fs; 控制电子运动的 THz 脉冲参数为: 波长 $25.6 \mu\text{m}$ (11.7 THz), 光强 $3.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, 脉冲宽度 85.3 fs (一个光周期). 基于方程 (3), 可以定义解离不对称参数 $A = (P_+ - P_-)/(P_- + P_+)$.

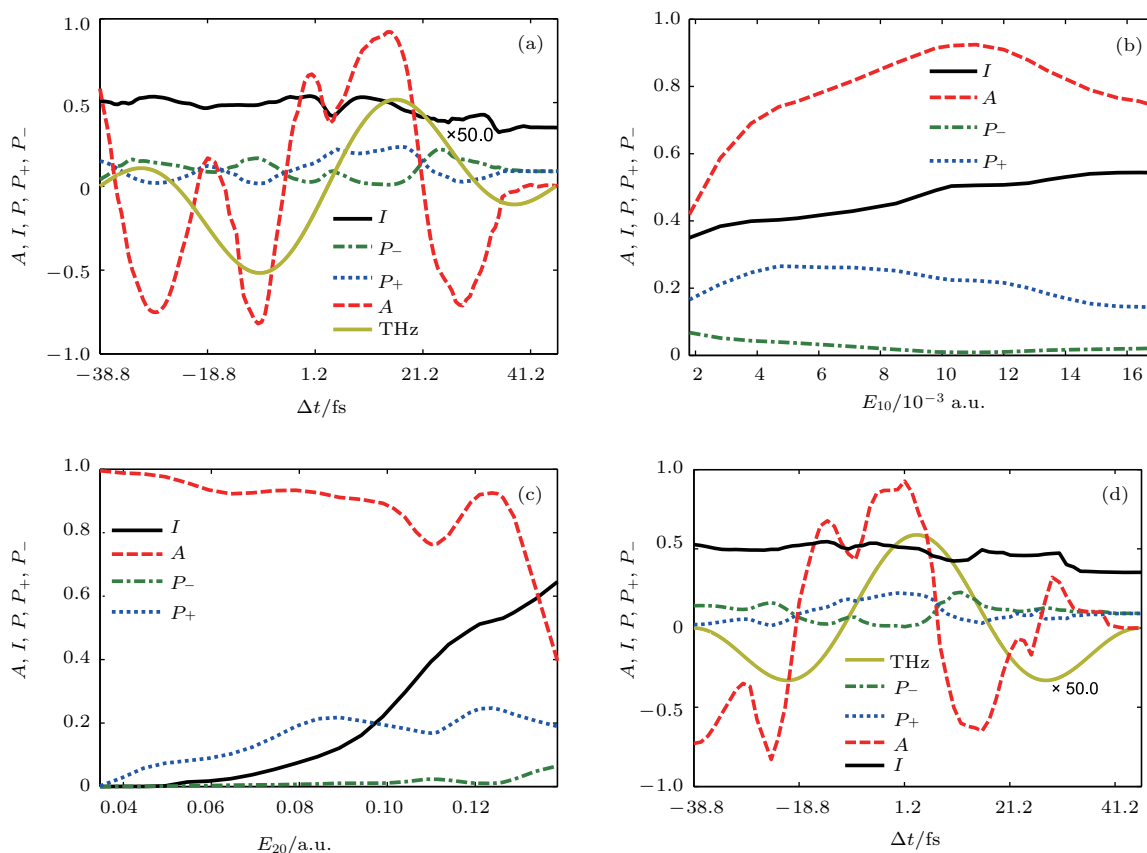


图 7 (a) 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 $P_{\pm}$ 随着时间延迟 Δt 的变化关系; (b) 在固定延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 下, 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 $P_{\pm}$ 随着 THz 电场强度 E_{10} 的变化关系; (c) 在固定延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 下, 解离不对称参数 A 、电离率 I 和 $P_{\pm}$ 随着 UV 脉冲电场强度 E_{20} 的变化关系; (d) 与 (a) 一致, 仅 THz 脉冲 CEP 变为 0.5π [62]

Fig. 7. Asymmetry parameter A , total ionization I , and $P_{\pm}$ as functions of time delay Δt ; (b) asymmetry parameter A , total ionization I , and $P_{\pm}$ as functions of the electric-field strength of the THz field E_{10} , at the fixed delay of $\Delta t = 14.6$ fs; (c) asymmetry parameter A , total ionization I , and $P_{\pm}$ as functions of the electric-field strength of the UV pulse E_{20} , at the fixed delay of $\Delta t = 14.6$ fs; (d) the same as panel (a), but the CEP of the THz pulse is 0.5π [62].

图 7(a) 给出了不同 THz 和 UV 脉冲时间延迟下, 不对称参数 A 、总的电离概率 I 和 $P_{\pm}$ 的变化. 可以看到大的解离不对称参数 $A = 0.922$ 出现在延迟 $\Delta t = 14.6$ fs 的位置, 对应于所有解离事件中高达 96.1% 的电子局域化概率. 对于曲线 A , 如果忽略掉延迟 -18.8 fs 和 3.2 fs 位置附近的变形, 整个曲线与 THz 电场形状基本一致. 进一步的研究表明电子局域化在这两个延迟位置的破缺是由于电子被过度激发造成的. 因为 THz 场的影响, 在这些延迟位置 UV 脉冲不仅能将电子激发到 $2p \sigma_u$ 态, 而且还将一部分激发到更高的 $3s \sigma$ 态上, 这导致电子局域化概率的迅速下降. 图 7(d) 与图 7(a) 类

似, 只不过 THz 脉冲的 CEP 从 0 改为 0.5π , 可以看到同样存在两个延迟位置 (-28.8 和 -8.8 fs), 曲线 A 发生畸变, 即电子局域化被破坏, 这同样是由于电子过度激发造成. 图 7(a) 和图 7(d) 清晰地表明 THz 场的波形对控制电子局域化过程有重要的影响, 因此实验中 THz 脉冲的 CEP 需要很好地锁定.

图 7(b) 给出了 A , I 和 $P_{\pm}$ 随着 THz 场强 E_{10} 的变化关系, 计算中 UV 和 THz 脉冲的延迟固定在 14.6 fs. 从图中可以看到, 当 THz 场强在 0.0071 a.u. ($1.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$) 和 0.0134 a.u. ($6.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$) 之间时, 解离态 $2p \sigma_u$ 中超过 90.0% 的电子被引导到右边的核上, 同时解离概率

大于 20.0%. 当 E_{10} 低于 0.0071 a.u. 时, 电子局域化概率小于 90%, 且随着 E_{10} 下降而迅速下降. 如果 E_{10} 高于 0.0134 a.u., 电子局域化概率又开始迅速下降, 因为大量电子被激发到更高的 $3s \sigma$ 态上, 导致解离不对称参数 A 下降. 因此, 只有 THz 脉冲的光强在 $1.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 和 $6.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 之间时, 才可以有效地控制电子局域化.

图 7(c) 给出了 A , I , 和 $P_{\pm}$ 随着 UV 脉冲场强 E_{20} 的变化关系. 从图中可以看出, 当 E_{20} 很低时, 可以获得很大的解离不对称参数, 但是电离概率几乎为零, 解离概率也很小. 例如, $E_{20} = 0.0446 \text{ a.u.}$ 时, $A = 0.986$, 电子局域化概率可以达到 99.3%, 但是解离概率只有 6.14%, 分子几乎不被电离 ($< 0.0013\%$). 随着 E_{20} 的增加, P_{+} 在增加, 但是 P_{-} 和 I 也在增长. 例如, 当 $E_{20} = 0.124 \text{ a.u.}$ 时, 得到 $P_{+} = 0.246$, $P_{-} = 0.096$, $A = 0.926$, 总的电离

概率 $I = 0.521$. 总的解离概率增加到 25.6%, 解离过程中超过 96.3% 的电子仍然可以被引导到右边的核上. 这意味着选择合适光强的 UV 光也是非常重要的.

6 正交中红外双色场操纵电子离子碰撞

激光驱动的电子离子碰撞是强场激光与物质相互作用中一个基本的物理过程. 对于高次谐波产生过程, 这种碰撞可以理解为电子干涉仪 [63]. 因此, 高次谐波可以用于获得微观电子结构和超快动力学信息 [64]、强场电离的多通道过程 [65] 和分子轨道的全息成像 [66]. 激光驱动电子离子碰撞过程很敏感地依赖于激光脉冲的偏振状态: 对于线偏振激

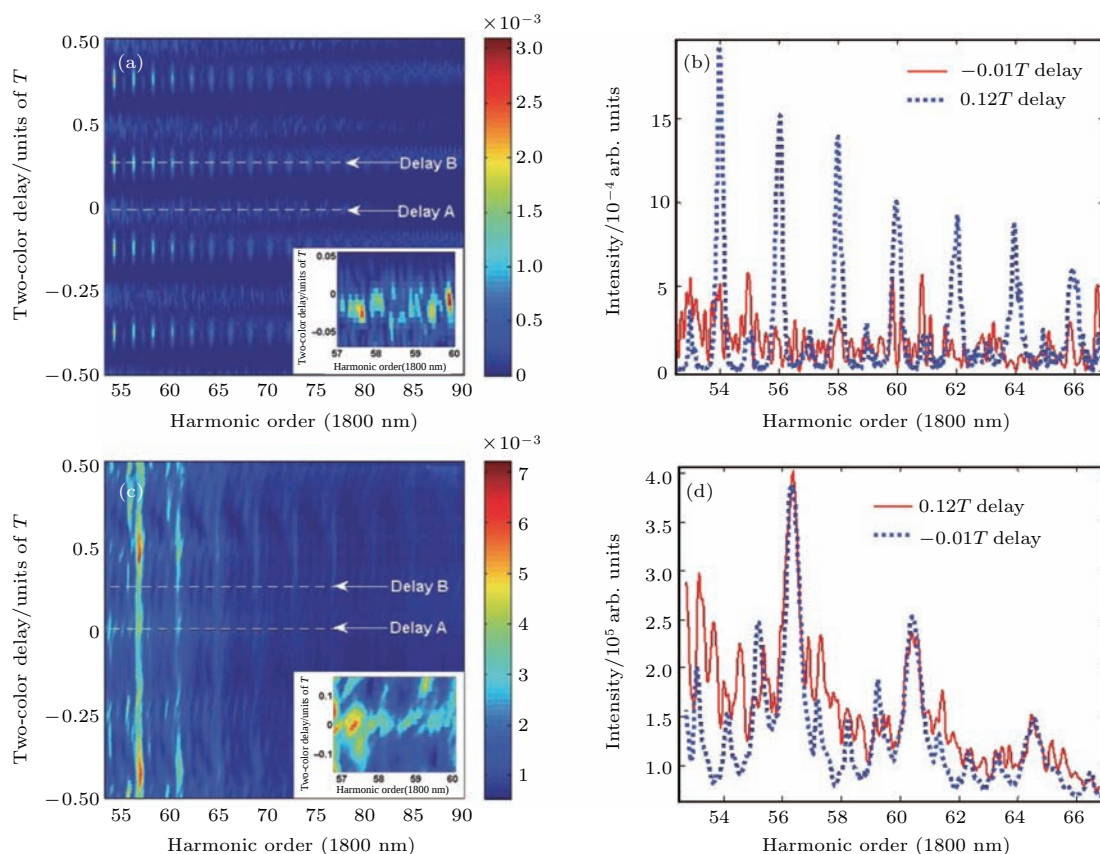


图 8 1800/900 nm 正交双色场下随着双色场延迟改变的高次谐波谱 (a) 理论计算结果; (c) 实验测量结果, (a) 和 (c) 中的插图给出了 57 次到 60 次高次谐波光谱的放大图; 在 1800/900 nm 正交双色场两个固定延迟 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 位置 (b) 理论计算结果和 (d) 实验测量的高次谐波谱的比较 [67]

Fig. 8. Calculated (a) and experimental (c) harmonic spectra driven by the 1800/900 nm OTC field as a function of the relative time delay, respectively, the insets in (a) and (c) show the enlarged spectrum from 57 th to 60 th harmonics; calculated (b) and experimental (d) comparison of the harmonic spectrum driven by the 1800/900 nm OTC field at two different time delays, i.e., $-0.01T$ and $0.12T$, respectively [67].

光, 碰撞过程每半个光周期重复一次, 而对于圆偏振激光, 电子无法回到母核, 不能发生碰撞. 对于正交偏振的双色场 (OTC), 每半光周期被释放出来的电子只有在某些特定的双色场延迟下才能与母核离子碰撞, 而在其他延迟位置, 电子由于无法精确地返回到母核位置, 导致无法产生有效的碰撞过程. 我们将正交双色场控制电子碰撞的研究拓展到了中红外波段 (MIR) [67], 发现在 1800/900 nm 正交场中仅有少数碰撞事件可以发生. 碰撞次数可以由双色场之间的相对延迟控制, 并且控制过程可以通过高次谐波谱直接反映出来.

图 8(a) 给出了不同双色场延迟下 1800/900 nm 正交双色场在氩气中产生的高次谐波谱. 正延迟代表 1800 nm 脉冲在 900 nm 脉冲的前面. 从图 8 可以看出有两类随延迟周期性变化的谐波谱, 周期均为 $T/4$. 在 $T/8$ 延迟附近 (图中标 Delay B), 可以清晰地看到分立的强偶次谐波和弱奇次谐波, 而在 0 延迟附近 (图中标 Delay A), 可以看到有密密麻麻的多个谐波峰, 出现类似连续谱的结构. 为了更清晰地观察谐波结构, 我们单独画出 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 延迟位置的谐波谱, 如图 8(b) 所示. 很明显在 $-0.01T$ 延迟位置, 原本分立的奇偶次谐波之间出现了多个峰结构. 但是在 $0.12T$ 延迟附近位置, 仅仅存在正常的、清晰的偶次和奇次谐波. 计算中所使用的激光参数为 1800 nm/50 fs/ 7.7×10^{13} W/cm² 和 900 nm/50 fs/ 1.5×10^{14} W/cm². 由于所用的脉冲强度远低于饱和光强, 产生的电离率仅为 6%, 这样确保了谐波谱上的多峰结构不是因为过度电离和基态耗尽引起的. 通过经典电子轨道分析 [67] 可以得出: 在延迟 A 附近出现的多峰谐波结构是由单个半光周期内的少数电子碰撞引起, 在延迟 B 附近清晰的谐波结构是由于类似线偏振光的不同半光周期的电子碰撞干涉效应引起.

我们通过实验证实了上述结果, 详细的实验参数可以从文献 [67] 中获得. 图 8(c) 给出了实验观测的高次谐波谱随 1800/900 nm 正交双色场时间延迟变化的结果. 图 8(d) 给出了在 $-0.01T$ 和 $0.12T$ 两个不同延迟位置处的高次谐波谱. 将图 8(a) 和图 8(b) 与图 8(c) 和图 8(d) 对比, 可以看到实验结果和理论计算符合得相当好. 进一步的分析发现, 在 800/400 nm 的正交双色场下结果会很不一样, 少数电子碰撞产生的多峰谐波结构与长波长的中

红外激光脉冲相关.

7 结语与展望

从 2001 年人们首次在实验上成功获得阿秒脉冲以来, 原子分子中超快电子动力学研究获得了长足的进展, 各种不同的超快技术和探测方法相继被提出. 目前, 阿秒脉冲应用的主要瓶颈在于, 由于目前阿秒脉冲的光子通量还比较低, 只能在强的红外脉冲辅助下才能实现抽运-探测研究. 但是高强度的红外脉冲电场本身会改变体系的状态, 使得测量结果未必代表无场状态. 因此, 发展高强度阿秒脉冲光源是超快电子探测方面的一个重要的目标, 只要这样才能最终实现阿秒-抽运-阿秒探测的超快科学研究. 这方面主要的实现途径包括大能量的飞秒激光脉冲直接在气体介质中产生阿秒脉冲, 高强度的飞秒激光脉冲在固体等离子体介质中产生阿秒脉冲以及在自由电子激光器中产生阿秒脉冲等.

过去十多年的阿秒脉冲应用主要集中在简单原子分子方面, 这是因为简单体系便于人们从基本的物理方向建立相关理论模型, 获得超快电子运动的清晰图像. 随着激光技术的成熟与理论框架的建立, 超快电子动力学研究必将由简单体系向更复杂的有机分子和生物分子等体系发展, 由气相介质向凝聚态纳米材料等方向发展. 目前已经在固体介质中开展了一些研究, 包括固体表面的超快光电离过程, 不同能带的电子布居过程等.

双色场作为研究和控制原子分子中超快电子动力学的重要手段, 一直在该领域占据重要的地位, 各种不同参数配置的双色场分别应用于不同的体系. 除了前文所说的作为阿秒超快电子动力学测量过程中的重要技术手段外, 也是一种重要的抽运-探测技术. 随着激光技术的发展, 强激光场的概念正在逐渐推进到中红外甚至太赫兹波段, 强场超快电子运动控制的概念已经发展到固体介质中, 但是这方面的研究目前刚刚起步, 有待于进一步的研究.

参考文献

- [1] Zewail A H 2000 *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **39** 587
- [2] Ivanov M Y, Kienberger R, Scrinzi A, Villeneuve D M 2006 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** R1

- [3] Nisoli M, Sansone G 2009 *Prog. Quantum Electron.* **33** 17
- [4] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [5] Agostini P, DiMauro L F 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 813
- [6] Sansone G, Poletto L, Nisoli M 2011 *Nature Photon.* **5** 655
- [7] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P B, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [8] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, Yakovlev V S, Gagnon J, Uiberacker M, Aquila A L, Gullikson E M, Attwood D T, Kienberger R, Krausz F, Kleineberg U 2008 *Science* **320** 1614
- [9] Zeng Z N, Cheng Y, Song X, Li R, Xu Z 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [10] Lan P F, Lu P X, Cao W, Li Y H, Wang X L 2007 *Phys. Rev. A* **76** 011402
- [11] Zheng Y H, Zeng Z N, Li X F, Chen X W, Liu P, Xiong H, Lu H, Zhao S T, Wei P F, Zhang L, Wang Z G, Liu J, Cheng Y, Li R X, Xu Z Z 2008 *Opt. Lett.* **33** 234
- [12] Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, Vozzi C, Stagira S, Sansone G, Nisoli M 2010 *Nature Photon.* **4** 875
- [13] Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y 1994 *Opt. Lett.* **19** 1870
- [14] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, Vozzi C, Avaldi L, Flammini R, Poletto L, Villoresi P, Altucci C, Velotta R, Stagira S, De Silvestri S, Nisoli M 2006 *Science* **314** 443
- [15] Mashiko H, Gilbertson S, Li C, Khan S, Shakyia M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [16] Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, Wang H, Khan S, Chini M, Wu Y, Zhao K, Chang Z 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 183901
- [17] Vincenti H, Quéré F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113904
- [18] Wheeler J, Borot A, Monchocé S, Vincenti H, Ricci A, Malvache A, Martens R, Quéré F 2012 *Nature Photon.* **6** 829
- [19] Xie X, Scrinzi A, Wickenhauser M, Baltuška A, Barth I, Kitzler M 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 033901
- [20] Liu C, Nisoli M 2012 *Phys. Rev. A* **85** 013418
- [21] Yuan K, Bandrau A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023003
- [22] Medišauskas L, Wragg J, Hart H, Ivanov M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 153001
- [23] Hickstein D, Dollar F, Grychtol P, Ellis J, Knut R, García C, Zusin D, Gentry C, Shaw J, Fan T, Dorney K, Becker A, Becker A, Kapteyn H, Murnane M, Durfee C 2015 *Nature Photon.* **9** 743
- [24] Mairesse Y, Quéré F 2005 *Phys. Rev. A* **71** 011410
- [25] Chini M, Gilbertson S, Khan S, Chang Z 2010 *Opt. Express* **18** 13006
- [26] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri A, Komninos Y, Mercouris T, Nicolaides C, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer A, Ernstorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, Yakovlev V 2010 *Science* **328** 1658
- [27] Nagele S, Pazourek R, Feist J, Doblhoff-Dier K, Lemell C, Tökeš K, Burgdörfer J 2011 *J. Phys. B* **44** 081001
- [28] Pazourek R, Nagele S, Burgdörfer J 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 765
- [29] Mauritsson J, Remetter T, Swoboda M, Klünder K, L'Huillier A, Schafer K, Ghafur O, Kelkensberg F, Siu W, Johnsson P, Vrakking M, Znakovskaya I, Uphues T, Zherebtsov S, Kling M, Lépine F, Benedetti E, Ferrari F, Sansone G, Nisoli M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 053001
- [30] Sansone G, Kelkensberg F, Pérez J, Morales F, Kling M, Siu W, Ghafur O, Johnsson P, Swoboda M, Benedetti E, Ferrari F, Lépine F, Sanz-Vicario J, Zherebtsov S, Znakovskaya I, L'Huillier A, Ivanov M, Nisoli M, Martín F, Vrakking M 2010 *Nature* **465** 763
- [31] Zhou X, Ranitovic P, Hogle C, Eland J, Kapteyn H, Murnane M 2012 *Nature Phys.* **8** 232
- [32] Calegari F, Ayuso D, Trabattori A, Belshaw L, Camillis S, Anumula S, Frassetto F, Poletto L, Palacios A, Decleva P, Greenwood J, Martín F, Nisoli M 2014 *Science* **346** 336
- [33] Yasuo N, Furukawa Y, Okino T, Eilanlou A, Takahashi E, Yamanouchi K, Midorikawa K 2015 *Nature Commun.* **6** 8197
- [34] Goulielmakis E, Loh Z, Wirth A, Santra R, Rohringer N, Yakovlev V, Zherebtsov S, Pfeifer T, Azzeer A, Kling M, Leone S, Krausz F 2010 *Nature* **466** 739
- [35] Holler M, Schapper F, Gallmann L, Keller U 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 123601
- [36] Chini M, Zhao B, Wang H, Cheng Y, Hu S, Chang Z 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 073601
- [37] Ott C, Kaldun A, Raith P, Meyer K, Laux M, Evers J, Keitel C, Greene C, Pfeifer T 2013 *Science* **340** 716
- [38] Cao W, Warrick E, Neumark D, Leone S 2016 *New. J. Phys.* **18** 013041
- [39] Gaarde M, Buth C, Tate J, Schafer K 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013419
- [40] Bækhoj J, Yue L, Madsen L 2015 *Phys. Rev. A* **91** 043408
- [41] Reduzzi M, Hummert J, Dubrouil A, Calegari F, Nisoli M, Frassetto F, Poletto L, Chen S, Wu M, Gaarde M, Schafer K, Sansone G 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033408
- [42] Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C, Sato S, Whitmore D, Gandman A, Prell J, Borja L, Prendergast D, Yabana K, Neumark D, Leone S 2014 *Science* **346** 1348
- [43] Krausz F, Stockman M 2014 *Nature Photonics* **8** 205
- [44] Niikura H, Villeneuve D M, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 083003
- [45] Yudin G L, Bandrauk A D, Corkum P B 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 063002
- [46] Yudin G L, Chelkowski S, Itatani J, Bandrauk A D, Corkum P B 2005 *Phys. Rev. A* **72** 051401
- [47] Chelkowski S, Yudin G L, Bandrauk A D 2006 *J. Phys. B* **39** S409
- [48] Liu C, Zeng Z, Li R, Xu Z, Nisoli M 2014 *Phys. Rev. A* **90**, 013403
- [49] Liu C, Nisoli M 2012 *Phys. Rev. A* **85** 053423
- [50] Peng L, Starace A 2007 *Phys. Rev. A* **76** 043401
- [51] Liu C, Reduzzi M, Trabattori A, Sunilkumar A, Dubrouil A, Calegari F, Nisoli M, Sansone G 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 123901

- [52] Paulus G, Nicklich W, Xu H, Lambropoulos P, Walther H 1994 *Phys. Rev. Lett.* **72** 2851
- [53] Paulus G, Becker W, Nicklich W, Walther H 1994 *J. Phys. B* **27** L703
- [54] Kim K, Zhang C, Shiner A, Kirkwood S, Frumker E, Garipey G, Naumov A, Villeneuve D, Corkum P 2013 *Nat. Phys.* **9** 159
- [55] Liu C, Zeng Z, Li R, Xu Z, Nisoli M 2015 *Opt. Express* **23** 9858
- [56] Priori E, Cerullo G, Nisoli M, Stagira S, Silvestri S, Villoresi P, Poletto L, Ceccherini P, Altucci C, Bruzzese R, Lisio C 2000 *Phys. Rev. A* **61** 063801
- [57] Liu C, Li R, Zeng Z, Zheng Y, Liu P, Xu Z 2010 *Opt. Lett.* **35** 2618
- [58] Brixner T, Gerber G 2003 *Chem. Phys. Chem.* **4** 418
- [59] He F, Ruiz C, Becker A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 083002
- [60] Liu K, Zhang Q, Lu P 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033410
- [61] Lan P, Takahashi E, Midorikawa K 2012 *Phys. Rev. A* **86** 013418
- [62] Jia Z, Zeng Z, Li R, Xu Z, Deng Y 2014 *Phys. Rev. A* **89** 023419
- [63] Corkum P 2011 *Phys. Today* **64** 36
- [64] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, Dudovich N, Villeneuve D, Corkum P, Ivanov M 2009 *Nature* **460** 972
- [65] Mairesse Y, Higuier J, Dudovich N, Shafir D, Fabre B, M'evél E, Constant E, Patchkovskii S, Walters Z, Ivanov M, Smirnova O 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 213601
- [66] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, P'epin H, Kieffer J, Corkum P, Villeneuve D 2004 *Nature* **432** 867
- [67] Zheng Y, Diao H, Zeng Z, Ge X, Li R, Xu Z 2015 *Phys. Rev. A* **92** 033417

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

Research progress of the control and measurement of the atomic and molecular ultrafast electron dynamics using two-color field*

Liu Can-Dong Jia Zheng-Mao Zheng Ying-Hui Ge Xiao-Chun

Zeng Zhi-Nan[†] Li Ru-Xin[‡]

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(Received 14 September 2016; revised manuscript received 17 October 2016)

Abstract

The advent of the ultrafast laser pulse provides the powerful and efficient tool for probing the ultrafast electron dynamics in atoms and molecules. The various nonlinear process induced by the laser-matter interaction allows one to obtain the electron motion information on the sub-femtosecond time scale. A series of the ultrafast spectroscopic technique, such as attosecond streak camera, attosecond transient absorption spectrum, and *etc.*, have been successfully applied to the probe of electron dynamics in atoms, molecules, and solids. Using two-color field is one of the significant methods to achieve the coherent control and exploring of the electron motion. This paper summarizes recent research activities in the field of the atomic and molecular ultrafast process investigated in State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, including the detection of the electron dynamics of the multi-bound states, measurement of the carrier envelope phase (CEP) and the phase of the attosecond pulse, and the ultrafast electron control with the THz/UV and MIR/IR field. To measure the dynamics of the multi-bound states, a broadband attosecond pulse can be used to ionize the electrons after it is excited by the pump laser. By changing the delay between the pump laser and the attosecond pulse, the measured electrons ionized by the broadband xuv attosecond pulse can present the multi-bound states dynamics simultaneously. The XUV/IR scheme is popularly used in attosecond dynamics measurement. But usually, the IR field is not very strong. We find that, if the IR field is strong enough to induce the above threshold ionization (ATI), the interference between the ATI electron and the electron from XUV pulse can be used to measure the CEP of the attosecond XUV pulse. Besides, if the electron ionized by attosecond pulse can be pushed back to the nuclei, the emission from the recombination can be used to determine the spectral phase of the attosecond pulse, which is an all-optical measurement. We also investigate the two color scheme of THz/UV and MIR/IR fields. With THz/UV two color scheme, very high electron localization can be achieved duration molecular dissociation when we use the UV pulse to excite the electron and the THz pulse to control the following electron movement. When we use the MIR/IR field to control the electron motion during the high harmonic generation, the recollision can be greatly decreased and the single attosecond pulse can be produced with multi-cycle MIR laser field.

Keywords: attosecond pulses, two-color field, ultrafast electron dynamics**PACS:** 32.80.Rm, 42.65.Ky, 42.65.Re**DOI:** 10.7498/aps.65.223206

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11127901, 61521093, 11227902, 11404356, 11274325, 11574332, 1151101142), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB808103), the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality Sailing Project, China (Grant No. 14YF1406000), Shanghai Commission of Science and Technology, China (Grant No. 12QA1403700) the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics Specialized Research Fund, China (Grant No. 1401561J00), and the Youth Innovation Promotion Association CAS.

[†] Corresponding author. E-mail: zhinan_zeng@mail.siom.ac.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: ruxinli@mail.shcnc.ac.cn