

测量超紫外线阿秒脉冲时间结构的光电子能谱非线性比例变换方程方法

葛愉成, 何海萍

北京大学物理学院和核物理与核技术国家重点实验室, 北京 100871

E-mail: gyc@pku.edu.cn

2011-08-03 收稿, 2011-09-21 接受

国家自然科学基金(10827505, 11175010)资助

摘要 为了研究化学反应、原子分子发光等超快速过程中电子态的时间演化过程, 需要能量越来越高、脉冲时间宽度越来越短、单色性越来越好的光脉冲作为激发和探测手段。但是, 如何快速、精确地测量这些光脉冲具体细致的时间结构, 一直是科学界的一个挑战。在过去的十多年时间里, 人们在测量超紫外线阿秒脉冲方面作出了巨大的努力, 取得了显著的成果。迄今为止, 已经发展出了几种测量阿秒脉冲时间宽度和重建脉冲形状的方法, 如阿秒光谱相位干涉直接电场重建法(SPIDER)和阿秒频率分辨光学快门法(FROG)。然而, 这些方法都是从传统的光学测量方法演变而来的, 不仅需要当代最先进的实验装置, 而且需要十分复杂的分析计算方法和实验数据拟合过程。为了推动阿秒计量学的发展, 进一步开展阿秒测量、脉冲时域定位(定时)、实验数据评估、探测器刻度, 以及对阿秒脉冲光源进行改进、优化和应用, 我们提出一种直接、快速、精确的基于光电子能谱变换方程的解析方法, 利用激光辅助超紫外线气体电离技术, 精确地观测超紫外线阿秒脉冲。新方法利用参数化的计算公式确定每个测量得到的光电子的相关激光相位, 利用解析性的光电子能谱解谱技术, 一步重建脉冲的形状和具体的时间结构。新方法不需要大量的光电子能谱的时间分辨测量, 也不需要冗长的迭代计算和实验数据拟合过程, 能从每个测量得到的光电子能谱重建出超紫外线脉冲的时域特性。用参数化公式从脉冲的能量带宽值计算得到脉冲重建结果的时间不确定性(即时间误差)。由于变换方程建立了超紫外线脉冲时间特性、重要的激光参数(峰值强度、电场包络形状、相位、载波-包络相位等)、原子或分子的电离能, 以及光电子能谱之间的直接联系, 可以用它从各个已知参数值计算出未知的参量。通过观测、分析某些参数和特定谱项的变化规律, 可以研究超快速反应动力学过程中随时间变化的相关信息。

关键词

阿秒测量
脉冲时间结构
光电子能谱
变换方程
相位确定法

在过去的十多年中, 产生和测量超紫外线(extreme ultra-violet, XUV)阿秒($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)脉冲的时间宽度一直是科学热点之一^[1-6]。高次谐波产生(high-order harmonic generation, HHP)技术已成功用于超紫外线阿秒脉冲的实验研究^[7-9]。为了细致地研究化学反应、原子分子发光等超快速过程中电子态的时间演化过程, 实验上需要光子能量越来越高、单色性越来越

好的超紫外线阿秒脉冲。但如何快速、实时、精确地定位和测量这些脉冲具体细致的时间结构(即脉冲时域特性), 一直是科学界的一种挑战, 其中的原因可归结为阿秒实验的技术难度和非常大的测量误差。在产生、选择和测量阿秒单脉冲的实验中, 有的实验室采用了相位匹配和空间滤波技术^[10-12]。不久前报道的实验结果是时间宽度为 80 as 的超紫外线阿秒脉

英文版见: Ge Y C, He H P. Use of photoelectron energy spectrum transfer equation for the measurement of a narrowband XUV pulse. Chin Sci Bull, 2012, 57, doi: 10.1007/s11434-011-4943-8

冲^[13]. 然而, 为了更好地研究和应用阿秒脉冲, 科学界一直在改进现有的实验方法, 并不断地寻找新的、更为快速、有效的测量方法. 迄今为止, 已经发展出几种用来测量阿秒脉冲时间宽度和重建脉冲形状的方法. 例如, 可以通过测量二阶自相关谱来直接确定阿秒脉冲序列的时间特性^[14]. 类似的方法还有用阿秒光谱相位相干电场重构法(attosecond spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction, SPIDER)和阿秒频率分辨光学快门技术(attosecond frequency-resolved optical gating, FROG)^[15-19], 以及这些方法的扩展版本^[20-22]. 而超紫外线脉冲与激光束在时间和空间上的交叉关联技术已经被广泛地用于测量阿秒脉冲的时间宽度^[1-5]. 激光辅助超紫外线电离(laser-assisted XUV photoionization)的空间不对称性被用来确定阿秒脉冲的时间宽度参数^[23,24]. 大部分上述测量方法都是基于阿秒条纹相机(attosecond streak camera)原理^[25-30], 它的量子力学理论已经建立起来. 用阿秒条纹相机技术, 虽然可以从光电子能谱(photoelectron energy spectrum, PES)重建阿秒脉冲的形状而不需要对脉冲参数作预先的假设, 但需要一组(几十个到上百个)时间分辨的光电子测量谱, 并对它们进行大量的迭代计算、实验数据拟合等过程^[31-33].

随着当代先进激光系统的发展, 目前已经能实现高精度的激光载波包络相位(carrier envelope phase, CEP)的稳定. 近年来, 激光-阿秒超紫外线交叉关联测量技术(cross-correlation technology)和脉冲时域定位(定时)技术也得到了很好的发展. 这在很大程度上激发了我们试图建立通过确定测量得到的每个光电子的相关激光相位来观测超紫外线阿秒脉冲的时间特性的方法. 由于激光辅助超紫外线电离涉及原子在强激光电场中的量子过程, 光电子的相关激光相位的计算基于单原子强场近似理论(strong field approximation, SFA)^[34].

本文详细介绍一种用光电子能谱非线性比例变换方程和光电子相关激光相位确定法快速地从计算和实验测量得到的光电子能谱直接重建超紫外线阿秒脉冲时间结构的新方法. 用不同光子能量的超紫外线、各种不同时间结构的阿秒脉冲以及实验上普遍采用的激光脉冲参数(波长 λ_L , 电场包络形状 $F(t)$, 时间宽度 τ_L (半高宽 FWHM), 载波-包络相位 Φ), 用量子力学方法计算光电子能谱. 通过定量分析脉冲重

建结果与原始输入参数之间的偏差来验证和研究这种新方法的有效性及时问精度. 新方法与目前一般使用的 FROG CRAB 方法^[20]的主要区别在于, 新方法可以从每个测量得到的光电子能谱重建阿秒脉冲的时间特性, 而后者为了重建阿秒脉冲的形状需要测量一组(几十个到几百个)时间分辨光电子能谱以及成千上万次冗长的数据迭代计算与实验数据拟合过程. 毫无疑问, 新方法极大地提高了测量速度、实验效率, 极大地降低了解谱难度, 而且能极大地提高脉冲重建结果的可靠性和精确度. 新方法提供了一种普遍适用的方法来处理当今阿秒测量中不可避免的由于各种技术限制带来的测量难题, 如脉冲在时间和空间上的抖动、实验参数的不稳定(在一个长时间实验过程中激光等参数的漂移和突变)、实验数据的涨落等. 由于变换方程包含了输入激光脉冲和超紫外线脉冲所有的参数, 而单脉冲(多脉冲)激发的光电子能谱记录了这些参数的瞬时值(平均值), 因此变换方程能被用来分析引起测量结果发生变化的原因. 这对于分析、评估和改进光源的性能指标有非常重要的意义. 另外, 某些参数和特定谱项的变化与物理过程密切相关, 因此利用变换方程来观测、分析这些参数和谱项的变化规律, 对研究和揭示超快过程中随时间变化的相关信息具有十分重要的科学意义.

1 激光辅助超紫外线电离

对于被超紫外线阿秒脉冲与少周期(few-cycle)激光脉冲交叉关联电场激发原子产生的光电子能谱, 在物理和数学上可以用强场近似理论^[34]通过计算原子从基态 $|0\rangle$ 到动量为 \mathbf{p} 的末态 $|\mathbf{p}\rangle$ 之间的量子跃迁幅度来计算: $b(\mathbf{p}) = i \int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) d_x [\mathbf{p} - \mathbf{A}_L(t)] e^{-i\tilde{S}(t)}$, 其中 $\tilde{S}(t)$ 为电子的半经典作用量, $\tilde{S}(t) = \int_t^{\infty} dt' \{ [\mathbf{p} - \mathbf{A}_L(t')]^2 / 2 + I_p \}$. 式中 t 为时间变量, 表示光电子的产生时刻. $E(t)$ 为线性偏振(x 方向)激光电场 $\mathbf{E}_L(t)$ 和超紫外线电场 $\mathbf{E}_X(t)$ 的复合电场的强度, $E(t) = E_L(t) + E_X(t)$, 其中 $E_L(t) = E_0 \cos(\omega_L t + \Phi)$ (x 方向), $E_X(t) = E'_X \cos(\omega_X t)$ (x 方向), $E_0, \omega_L (E'_X, \omega_X)$ 分别为激光(超紫外线)电场强度的幅值和角频率. $\mathbf{A}_L(t)$ 为激光电场的矢量势, $\mathbf{E}_L(t) = -(1/c) \partial_t \mathbf{A}_L(t)$, c 为真空中光速. 上述公式中 Φ 和 I_p 分别表示激光脉冲的载波-包络相位 CEP 和原子或分子的电离能. $d(\mathbf{p}) = \langle \mathbf{p} | 0 \rangle$ 为基态 $|0\rangle$ 到末态 $|\mathbf{p}\rangle$ 电

偶极跃迁的矩阵元, $d_x(\mathbf{p})$ 为其在 x 方向的分量. 为简化表述和计算, 本文采用原子单位, 并用氢原子作为电离气体. 因此, 基态 $|0\rangle$ 到末态 $|\mathbf{p}\rangle$ 的跃迁, $d(\mathbf{p}) = i2^{7/2} \alpha^{5/4} \mathbf{p} / \pi(2I_p + \mathbf{p}^2)$, 其中 $\alpha = 2I_p$, $I_p = 13.6$ eV. 显然, 上述 $b(\mathbf{p})$ 的表达式描述了不同时刻产生的光电子波包之间的量子干涉现象.

我们用高斯形的时间函数 $F(t) = e^{-4\ln^2(t-t_0)^2/\tau_L^2}$ 来表示激光脉冲电场的包络形状, 其中 τ_L 为脉冲的时间宽度(半高宽, full-width at half-maximum, FWHM), 载波-包络相位 CEP 为 $\Phi = -\omega_L t_0$. 如图 1(a)所示的激光脉冲, $\tau_L = 7$ fs, 波长 $\lambda_L = 750$ nm. 在理论计算和实验测量中, 一个光电子能谱, $n(W)$ (W 为光电子能量), 被定义为单位能量中测量到的光电子数, 即 $n(W) = N_e(W)/E_{\text{bin}}$, 其中 $N_e(W)$ 为能量为 W 处收集到的光电子数, E_{bin} 为能量 Bin 道(间隔), 例如 $E_{\text{bin}} = 1$ eV, 0.5 eV, 或者更小. τ_X 被定义为高斯形超紫外线脉冲的时间宽度(FWHM). 图 1(b)显示了由 2 种不同光子能量 ($\hbar\omega_X \equiv \omega_X = (90, 283.7)$ eV, $\hbar = 1$) 的单色超紫外线激发氢原子计算得到的光电子能谱(实线所示, 任意单位). 计算时其他激光和超紫外线的脉冲参数如下: $\tau_L = 7$ fs, $\lambda_L = 750$ nm, $\Phi = 0^\circ$, 激光强度 $S = 4 \times 10^{13}$ W/cm² (电子质动能 $U_p = S/2\omega_L^2 = E_0^2/4\omega_L^2 = 2.1$ eV), $\tau_X = 0.150$ fs. 另外, 光电子能谱是在 $\theta = 0^\circ$ 角方向(θ 是光电子末态动量 \mathbf{p} 与激光电场极化方向 x 之间的夹角)计算得到的. 图中虚线表示对应的经典预言值 $n_c(W)$, 它是用稳定点(即鞍点)理论计算得到的^[28,34]. 为了相互比较, 使 $n_c(W)$ 的最大值与 $n(W)$ 的最大值相同. 如

图 1(b)所示, 光电子能谱的量子计算结果 $n(W)$ 与经典预言值 $n_c(W)$ 在相对分布数值上差别较小, 但它明显地反映出了量子干涉的结果. $n(W)$ 与 $n_c(W)$ 之间这种较小的差别促使我们建立待测量超紫外线脉冲的参数与测量得到的光电子能谱之间一种解析性的变换方程. 有了这样的方程, 就可以直接将实验测量得到的光电子能谱数据转换成超紫外线脉冲的时间分布特性数据. 问题的关键是如何推导这个方程, 并且如何评估利用这样的变换方程得到的脉冲重建结果及其误差. 下面, 我们用半经典方法推导变换方程, 并给出计算光电子产生时刻或激光相关相位的公式.

2 光电子能谱变换方程

从半经典力学观点来看^[1], 由超紫外线和激光电场共同激发、在 t 时刻产生、 $\theta = 0^\circ$ 方向上飞出的光电子的速度为 $v(t) = v_i(t) + 2\sqrt{U_p/m_e} F(t) \sin(\omega_L t + \Phi)$, 其中 $v_i(t)$, U_p ($\propto S$), m_e 分别为光电子的初始速度、电子的最大质动能和电子质量. $v_i(t) = \sqrt{2W_i(t)/m_e}$, $W_i(t)$ 为光电子的初始动能. 对于窄带超紫外线, 我们取脉冲中心能量 ω_X 近似作为所有脉冲光子的能量, 光电子初始能量 $W_i(t) \approx W_0 = \omega_X - I_p$. 根据上述 $v(t)$ 表达式, 光电子的末态动能 ($W(t) = m_e v^2(t)/2$) 可以用下式表示:

$$W(t) = W_0 + 2U_p F^2(t) \sin^2(\omega_L t + \Phi) + \sqrt{8U_p W_0} F(t) \sin(\omega_L t + \Phi). \quad (1)$$

而另一方面, $v(t)$ 表达式还可以等价地表示为

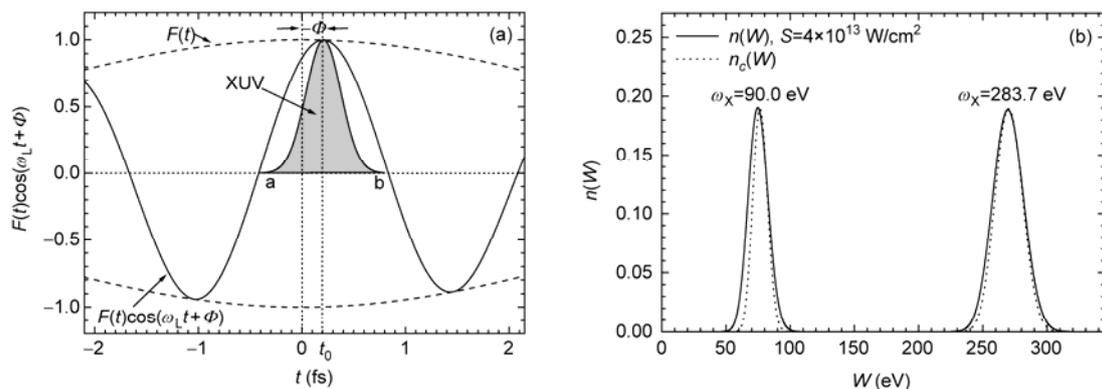


图 1 (a) 激光和超紫外线 XUV 脉冲交叉关联示意图. $F(t)$ (折线)、 $F(t)\cos(\omega_L t + \Phi)$ (实线) 和 Φ 分别表示激光脉冲的包络、载波电场(幅度 1)和载波-包络相位. (b) 用脉冲宽度 $\tau_L = 7$ fs, 波长 $\lambda_L = 750$ nm, $\Phi = 0^\circ$, 脉冲强度(峰值功率密度) $S = 4 \times 10^{13}$ W/cm² (质动能 $U_p = 2.1$ eV) 的激光与光子能量 ω_X 分别为 90 eV 和 283.7 eV 的单色超紫外线阿秒脉冲(时间宽度 $\tau_X = 0.150$ fs, FWHM) 计算得到的光电子能谱 $n(W)$ (实线, 任意单位, W 为光电子能量) 以及对应的经典预言值 (虚线)

$$\sin(\omega_L t + \Phi) = \frac{\sqrt{W(t)} - \sqrt{\omega_X - I_p}}{\sqrt{2U_p} F(t)} \quad (2)$$

对于一个时间宽度小于半个激光周期、时间上定位在 $t=0$ 时刻附近(激光矢量势 $A_L(t)$ 单调变化区域)的超紫外线脉冲, 由于电场包络 $F(t)$ 变化相对较慢, (2)式中因子 $F(t) \approx 1$. (2)式是用来计算光电子产生时刻 t 或光电子相关激光相位 $\omega_L t + \Phi$ 的公式. 实际计算时, 用光电子能谱的能量位置 W 代替(2)式中的 $W(t)$.

从光电子的速度表达式 $v(t)$ 或能量表达式(1)可以看出, 激光辅助超紫外线电离过程中激光脉冲的作用相当于一个光电子能量调制器, 也可以理解为一个光学快门, 它使窄带超紫外线的能量分布变成很大的光电子能量分布, 同时将超紫外线的脉冲信息投影到这个能量分布中, 即我们测量得到的每个光电子能谱携带着整个相互作用时域的信息, 包括激光和超紫外线脉冲的信息以及光电子电离时刻的原子态或分子态的电离能信息. 这为我们从光电子能谱入手实时地(real time)研究相互作用中各个参与者的物理状态提供了可能性. 很显然, 激光强度 S 越大, 光电子的能量范围越大, 越有利于数据分析. 但是, 随着激光强度 $S (\propto U_p)$ 的增强, 光电子的能量范围越来越大, 将与本底和激光本身引起的阈上电离谱(above-threshold ionization, ATI)部分重叠. 因此, 激光强度不能无限增大, 阈上电离限制了在实验中激光强度上限的选择^[28,35]. 一般情况下, 根据简单判据^[28]: $8U_p \leq \omega_X - I_p$, 对于我们所关心的超紫外线的能量(几十 eV 以上), 中等强度(或更低)的激光脉冲(如 $\lambda_L=750$ nm, $S=1.2 \times 10^{14}$ W/cm², $U_p=6.3$ eV)能确保光电子能谱与阈上电离谱之间完全分开(能量上不重叠).

图 2 为窄带阿秒超紫外线激发产生的光电子能谱变换方程推导过程示意图($\theta=0^\circ$). 图中点划线表示不同时刻 t 产生的光电子能量 $W(t)$ (见(1)式). 加粗的曲线段(APB)表示激光 $A_L(t)$ 单调变化的半个周期. 超紫外线脉冲的强度分布用 $f(t)$ 表示(图 2 上方粗实线). 如图所示, $t=a, b$ 之间产生的光电子将分布在能量 $W=W1, W2$ 之间. 利用激发函数 $\sigma(\omega_X)$, 它表示原子被超紫外线激发产生光电子的电离截面, 它是超紫外线光子能量的函数, 则超紫外线脉冲强度分布 $f(t)$ 和测量得到的光电子能谱 $n(W)$ 之间可以用一个解析方程联系起来. 实验上, 在能量 W 处、间隔 dW 内

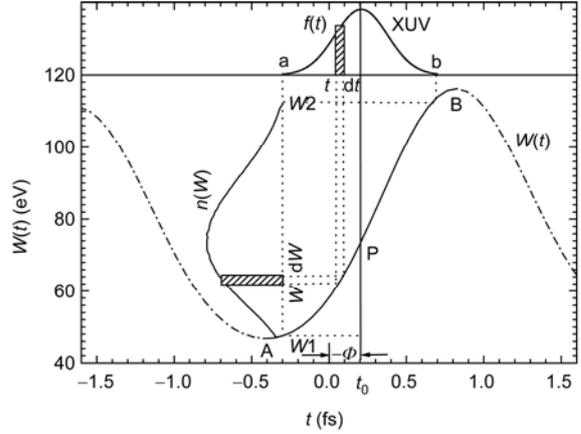


图 2 光电子能谱变换方程的推导. $f(t)$ (图上方高斯形粗实线)为超紫外线脉冲的强度分布函数. $t=a, b$ 分别为超紫外线脉冲的时间起点和终点. $W(t)$ (点划线)表示光电子能量((1)式), 其中加粗的曲线段(APB)表示激光电场单调变化的半个激光周期. 与 $t=a, b$ 相对应, 光电子能量分布范围为 $W=W1, W2$ 之间. $n(W)$ 表示光电子能谱, dW 和 dt 分别表示相对应的能量间隔

收集到的光电子数为 $n(W)dW$, 它正比于 t 时刻、 dt 间隔内入射超紫外线的 photons 数, 即 $n(W)dW \propto f(t)dt$. 考虑到光电子的探测效率 ϵ 、几何因子 g 、气体原子密度 ρ 和光电离截面 $\sigma(\omega_X)$, 则 $n(W)dW = \epsilon g \rho \sigma(\omega_X) f(t)dt$. 对于窄带超紫外线, 激发函数 $\sigma(\omega_X)$ 和探测效率都近似为常数, 其他因子(g, ρ)也为常数, 我们用另一个常系数 μ 表示 $1/\epsilon g \rho \sigma(\omega_X)$, 则得到如下所示的光电子能谱变换方程:

$$f(t) = \mu \frac{dW}{dt} n(W), \quad (3)$$

式中微商 dW/dt 从(1)式计算得到, 表示能量和时间的约束条件. dW/dt 对于能量和时间变量都是非线性函数, 因此变换方程式(3)表示的是超紫外线脉冲特性与光电子能谱之间的非线性比例关系. 由于超紫外线脉冲特性(强度分布)和光电子能谱都是分布函数, 各自可以被归一化, 为简化计算和数据处理, 系数 μ 可以简单地取值 1. 用方程(3)从光电子能谱计算 $f(t)$, 再经过归一化处理, 就得到了超紫外线脉冲的重建结果. 对于在 $\theta=180^\circ$ 计算或测量得到的光电子能谱, 或者等价地在 $\theta=0^\circ, \Phi=180^\circ$, 或载波函数为 $-F(t) \times \cos(\omega_L t + \Phi)$ 的激光脉冲条件下计算得到的光电子能谱, 变换方程与(3)式类似, 只要在(3)式右边加负号即可. 分析表明, 由于激光辅助超紫外线电离中电子波包之间的量子干涉, 使得通过半经典方法推导得

到的(3)式在用于脉冲重建时会带来理论误差. 另外, 超紫外线脉冲不可能是单色的, 其带宽也会导致用激光相位确定法(2)式计算光电子产生时刻的误差. 接下来我们仔细分析这些误差的来源, 并给出定量评估脉冲重建结果的方法, 以及计算脉冲带宽引起的误差的公式.

3 脉冲重建误差分析

用变换方程重建超紫外线脉冲时间结构, 其误差主要有三方面的来源: 一是方法本身, 即用半经典变换方程计算结果必定忽略了量子效应的影响, 但这一部分可以通过理论计算或数字实验(即从理论计算能谱重建脉冲时间特性)来定量分析和评估. 二是脉冲带宽引起的时间误差. 三是实验条件引起的误差, 如数据涨落、激光和超紫外线脉冲时间和空间的抖动、参数的飘移和涨落等引起的误差. 我们先对脉冲带宽引起的时间误差进行定量分析, 并给出计算公式, 然后再对量子效应引起的误差进行分析. 实验条件引起的误差取决于实际的测量过程, 在此不做介绍. 但有了前二种分析结果, 就可以定量分析实验条件引起误差的原因, 从而分析、评估和改善实验条件, 也可以依此实时研究实验过程中各种参数的变化.

通常, 超紫外线脉冲的啁啾是频率的时间分布函数 $\omega_X(t)$, 它和超紫外线脉冲强度随时间的分布函数 $f(t)$ 全面描述了脉冲的时间特性. 对于一个窄带超紫外线脉冲, 其单色性可简单地用脉冲中心频率 ω_X 和带宽 ΔW_{BW} 来表示. 我们利用(1)式表示的光电子能量和时间的约束关系来推导脉冲重建结果的时间误差公式.

(1)式实际上是激光场的光电子能量调制方程. 对于特定时刻 t , 假设激发光电子的超紫外线光子能量 ω_X 有一个微小变化量 $\Delta\omega_X$, 则光电子的初始动能 W_0 也会有同样的微小变化(初始动能为 $W_0 + \Delta\omega_X$). 光电子的最终动能 W 也会有相应的变化 ΔW . 这些参数满足

$$W(t) + \Delta W = W_0 + \Delta\omega_X + 2U_p F^2(t) \sin^2(\omega_L t + \Phi) + \sqrt{8U_p(W_0 + \Delta\omega_X)} F(t) \sin(\omega_L t + \Phi). \quad (4)$$

实际上, 对于窄带超紫外线测量, 我们仍可简单地认为光电子的初始动能 W_0 是一个常数, 并且可以假设光子能量 ω_X 的微小变化量 $\Delta\omega_X$ 引起的最终光电子动能 W 的变化 ΔW 会导致确定光电子产生时刻 t' 相对于

t 的偏差 Δt ($t' = t + \Delta t$), 如下式所示:

$$W(t) + \Delta W = W_0 + 2U_p F^2(t + \Delta t) \sin^2[\omega_L(t + \Delta t) + \Phi] + \sqrt{8U_p(W_0 + \Delta\omega_X)} F(t + \Delta t) \sin[\omega_L(t + \Delta t) + \Phi]. \quad (5)$$

仔细分析(4)和(5)式, 如果满足下列三个条件: (i) $\Delta\omega_X \ll \omega_X$ 或 $\Delta W \ll W_0$, 即 $W_0 + \Delta W \approx W_0$; (ii) $F(t) \approx 1$ 和 $F(t + \Delta t) \approx 1$, 即 t 和 $t + \Delta t$ 都接近 $t=0$ 时刻; (iii) (4)和(5)二式相减后的项 $2U_p F^2(t + \Delta t) \sin^2[\omega_L(t + \Delta t) + \Phi] - 2U_p F^2(t) \sin^2(\omega_L t + \Phi)$ 相对于其他项可以被忽略, 则从(4)和(5)式可以近似地解出 ΔW 如下所示:

$$\Delta W \approx \omega_L \sqrt{8U_p W_0} F(t) \cos(\omega_L t + \Phi) \cdot \Delta t \approx \frac{dW(t)}{dt} \Delta t. \quad (6)$$

对于符合上述三个条件的阿秒超紫外线脉冲, 我们可以用脉冲带宽 ΔW_{BW} 代替 ΔW , 则得到如下所示确定光电子产生时刻 t 的误差 Δt 的公式:

$$\Delta t = \frac{\Delta W_{BW}}{|dW(t)/dt|}. \quad (7)$$

(7)式表明, Δt 的大小与时刻 t 有关. 因此, 首先用(2)式从测量得到的光电子能谱的不同能量值 W 计算出不同的光电子产生时刻 t , 然后用(3)式计算出待测量超紫外线脉冲的各个瞬时强度分布值 $f(t)$, 最后用(7)式计算出各个时间点的时间误差 Δt , 则整个脉冲的强度分布特性以及可能的时间偏差被完整地重建出来了.

从(6)和(7)式可以看出, 脉冲重建结果的时间误差 Δt 依赖于以下一些参数: 超紫外线光子能量 ω_X 、脉冲频率带宽 ΔW_{BW} 、激光角频率 ω_L 、激光强度 S 、时间 t (或激光相位 $\omega_L t + \Phi$). 例如, Δt 与 ΔW_{BW} 近似成正比关系, 与激光强度 S (或质动能 U_p) 的平方根和激光频率成反比. 在理论上, 可以通过数字实验即计算单色超紫外线脉冲激发的光电子能谱和脉冲重建, 用三个参数来评估方法本身由于量子干涉效应导致的脉冲重建结果的偏差, 即脉冲强度分布均方根偏差 α 、平均时间偏差 β 和均方根时间偏差 γ . 它们分别被定义为

$$\alpha = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N [f(t_n) - f_0(t_n)]^2}, \quad (8)$$

$$\beta = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \Delta t_n, \quad (9)$$

$$\gamma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (\Delta t_n)^2}, \quad (10)$$

式中 $f_0(t_n)$ 是脉冲强度初始分布 $f_0(t)$ (最大值 1) 在 $t=t_n$ ($n=1, 2, \dots, N$) 时刻的值. t_n , $f(t_n)$ 和 Δt_n 分别是光电子产生时刻、从光电子能谱能量位置 $W=W_n$ ($n=1, 2, \dots, N$) 计算得到的、分布最大值归一化后的脉冲强度和由量子干涉效应引起的时间误差 (即 $f(t_n)$ 与 $f_0(t_n)$ 之间的时间差, 其中 $f(t_n)=f_0(t_n)$). 显然, α , β 和 γ 的值越小, 由量子干涉效应引起的脉冲重建结果的误差越小.

4 理论计算谱脉冲重建

作为脉冲重建过程的示例, 我们在计算中使用与图 1(a) 所示相同的激光脉冲 ($\tau_L=7$ fs, $\lambda_L=750$ nm, $\Phi=0^\circ$, $\theta=0^\circ$). 图 3(a) 和 (b) 中的虚线 (它们和实线几乎重合) 分别是超紫外线单脉冲强度初始分布 $f_0(t)$ (脉冲宽度 $\tau_X=0.4$ fs). 实线分别是能量分别为 $\omega_X=90$ eV 和 283.7 eV 的超紫外线脉冲理论计算得到的光电子能谱重建的结果 $f(t)$. 计算中激光强度 $S=4 \times 10^{13}$ W/cm². 图中不同时刻的误差棒长度代表用脉冲带宽 $\Delta W_{BW}=5$ eV 计算得到的时间误差. 从图中可以看到, $f_0(t)$ 与 $f(t)$ (虚线和实线) 几乎重合, 微小的差别是激光辅助超紫外线电离中量子干涉效应引起的. 图 3(a) 和 (b) 中两个单脉冲重建结果的 (α , β , γ) 值分别为 (4.86×10^{-3} , 7.744×10^{-4} fs, 0.00893 fs) 和 (6.41×10^{-3} , 2.78×10^{-5} fs, 0.01066 fs). 从这些数据可以看出, 利用变换方程 (3) 得到的脉冲强度分布值无论是其分布形状、脉冲在时域上的位置 (定时) 还是对称性, 都成功地重现了初始分布. 与图 3(a) 和 (b) 类似, 图 3(c) 中的实线同样成功地重建了一个三脉冲的时间结构 (虚线为脉冲初始分布), 其中单色脉冲光子能量 $\omega_X=283.7$ eV, 脉冲宽度 $\tau_X=0.150$ fs, 脉冲间隔 0.300 fs, $S=1.2 \times 10^{14}$ W/cm². 图 3(c) 中的结果表明变换方程 (3) 同样可以用来重建具有复杂时间结构的脉冲. 另外, 我们看到随着超紫外线光子能量的提高, 脉冲重建结果的精度越高 (即偏差越小).

5 实验测量谱脉冲重建

由于缺乏专门针对窄带超紫外线阿秒脉冲的测量结果, 我们采用文献 [4] 中对具有较大能量带宽、 $\omega_X=93$ eV 脉冲的测量结果来说明实验谱的脉冲重建过程. 图 4(a) 中的实点 (方块) 表示的能谱是在没有激光的情况下测量得到的光电子谱. 从它的高斯拟合曲线 (实线) 可以得到脉冲的能量带宽为 $\Delta W_{BW}=8.5$ eV. 图 4(b) 中的实点 (方块) 是将脉冲在时间上定位在 $t=0$

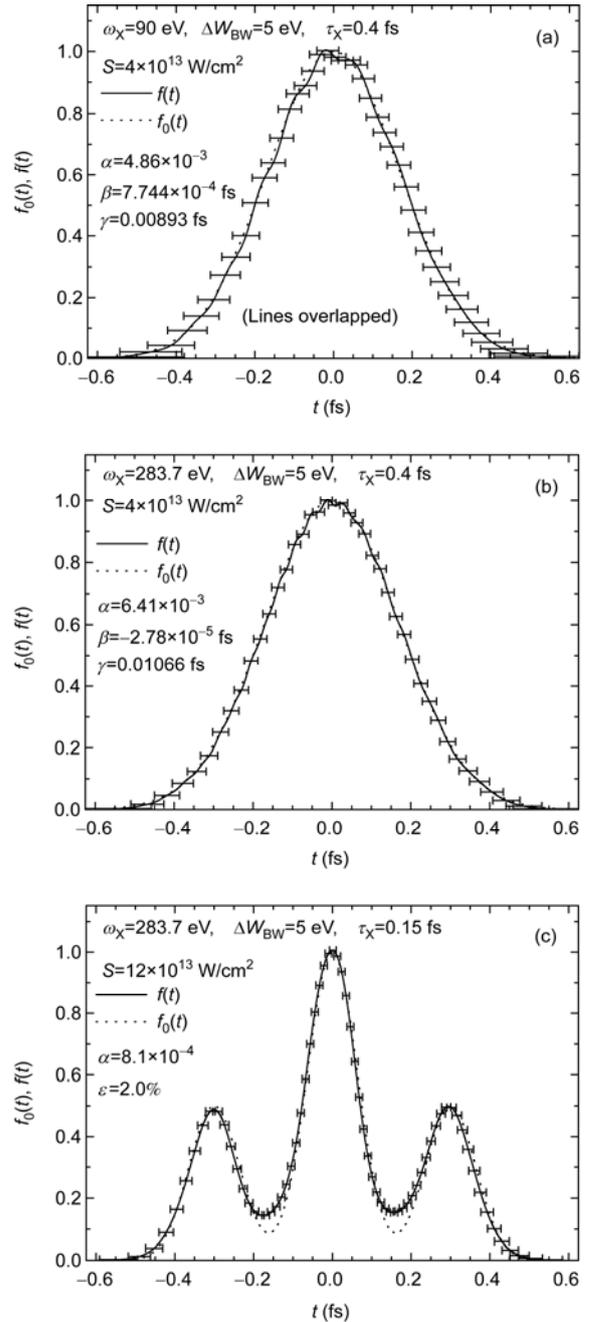


图 3 (a) 和 (b) 分别是单脉冲重建结果. 参数如下: $\tau_X=0.4$ fs, $S=4 \times 10^{13}$ W/cm², $\omega_X=90$ eV (a) 和 $\omega_X=283.7$ eV (b). 虚线: 初始输入的单个超紫外线脉冲强度分布 $f_0(t)$; 实线: 脉冲重建结果 $f(t)$ (它与 $f_0(t)$ 几乎重合在一起). 误差棒长度代表不同时刻由脉冲带宽 $\Delta W_{BW}=5$ eV 引起的的时间误差. (c) 与 (a) 和 (b) 相似, 多脉冲重建结果. 参数如下: $\tau_X=0.15$ fs, $S=1.2 \times 10^{14}$ W/cm², $\omega_X=283.7$ eV

(激光电场矢量势 $A_L(t)=0$) 附近时测量得到的光电子能谱. 图 4(c) 中的实点是图 4(b) 中所示能谱在激光强

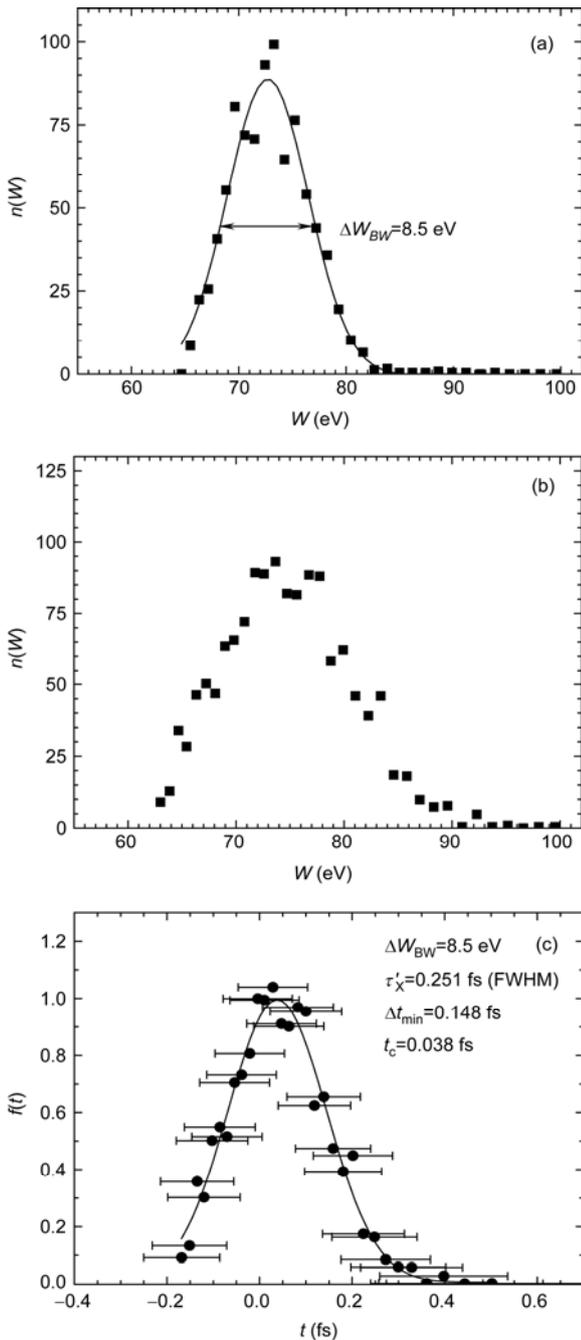


图4 (a)和(b)取自文献[4]中的实验能谱数据. (a) 实点(方块): 在激光强度为零时测量得到的光电子能谱; 实线: 高斯拟合曲线, 脉冲带宽 $\Delta W_{BW}=8.5$ eV. (b) 实点(方块): 激光强度 $S \neq 0$ 时测量得到的光电子能谱. (c) 实点: 用变换方程计算得到的脉冲强度分布值; 实线: 高斯拟合曲线. 误差棒长度: 用脉冲带宽 $\Delta W_{BW}=8.5$ eV 计算得到的时间误差值

度 $S=1.7 \times 10^{13}$ W/cm²时的脉冲重建结果, 实线为其高斯拟合曲线. 从该高斯拟合曲线可以得到, 脉冲的中

心位置在 $t_c=0.038$ fs, 脉冲宽度 $\tau'_\chi=0.251$ fs (FWHM), 这与文献[4]中的结果 $\tau_\chi=0.250$ fs (FWHM)完全符合. 用 $\Delta W_{BW}=8.5$ eV 计算得到的最短误差棒长度 $\Delta t_{\min}=0.148$ fs. 在实际测量中, 超紫外线光学带通滤波器的带宽可以做得更小, 例如 $\Delta W_{BW}<5$ eV^[1]. 用 $\Delta W_{BW}=4$ eV 计算得到的 $\Delta t_{\min}=0.069$ fs.

尽管上述计算中脉冲带宽和实验数据涨落很大, 但脉冲重建结果很好地给出了脉冲形状、中心位置(定时)和脉冲宽度等信息. 如果能够利用窄带滤波器, 则按照上述过程重建的脉冲信息, 可以作为参考数据去重新调整脉冲的时间位置和激光强度, 以期得到更好的实验数据和更为准确的重建结果. 这些测量结果同样可以用作阿秒脉冲产生、传输、单脉冲选择和探测的参考信息. 提高激光参数和测量条件的稳定性, 减少脉冲带宽将显著提高测量数据的质量和脉冲重建结果的精度.

6 结论

研究表明, 利用变换方程和光电子激光相位确定法, 一个少周期的激光脉冲犹如一把“阿秒尺”可用于窄带超紫外线阿秒脉冲具体时间结构的测量. 方法本身即激光辅助超紫外线电离中的量子干涉效应引起的脉冲重建结果的误差非常小, 实际的误差主要由脉冲的带宽和实验数据的涨落引起. 除了能提供脉冲的时间宽度外, 新方法还能提供更多的脉冲信息, 如脉冲位置、形状、不对称性和多脉冲(或侧峰)结构. 这些信息对于光源建设、运行, 光脉冲传输、测量, 以及对光源的评估、优化和应用具有非常重要的意义.

实验测量和脉冲重建的主要步骤如下: (i) 在没有激光脉冲情况下($S=0$)测量窄带超紫外线脉冲的光电子能谱, 经高斯拟合后给出其中心能量 W_0 和带宽 ΔW_{BW} . (ii) 在时间上尽量将脉冲调整到 $t=0$ 附近(对于 $\Phi=0$ 情形). (iii) 在 $\theta=0^\circ$ (或 180°)和一定激光强度($S \neq 0$)下测量光电子能谱. (iv) 对光电子能谱的每个能量点 W 用(2)式计算出光电子的产生时刻 t , 从(1)式计算出非线性比例因子 $dW(t)/dt$. (v) 用(3)式计算出能谱中各能量点对应的脉冲强度分布值 $f(t)$, 并对它们进行归一化处理. (vi) 利用脉冲带宽值 ΔW_{BW} 对每个时间点 t 用(7)式计算出相应的误差棒长度 Δt . (vii) 将当前的脉冲重建结果作为参考, 调整脉冲的时域位置和激光参数, 并进行下一步的测量. 这样经

过有限次的测量后,将能得到高质量的实验数据和准确的脉冲重建结果。

用不同参数的激光和超紫外线阿秒脉冲所进行的大量计算表明,用变换方程的脉冲一步重建法适用于很宽的超紫外线能量范围(几十 eV 到 keV 或更高的 X-射线)。脉冲时域宽度的测量范围可以达到半个激光光学周期。因此,提高激光周期就能扩展脉冲时域测量范围。由于不需要冗长的光电子能谱时间分辨测量,以及大量的迭代计算和复杂的实验数据

拟合过程,使得利用变换方程测量脉冲时间结构的方法具有简单、快速、精确等优点,可以发展成为实时和在线(online)的测量方法。另外,由于变换方程包含了包括激光(波长、强度、包络形状、载波-包络相位)、超紫外线(频率、时间结构)以及原子(分子)的电离能等参数,用变换方程的测量方法可以被实时地用来研究上述众多参数中某些特定参数在时间和空间上的变化过程。这是我们研制阿秒示波器和研究超快速过程所采用的技术原理。

致谢 衷心感谢与德国马克斯-普朗克研究所量子光学实验室(Max-Planck-Institut fuer Quantenoptik) Ferenc Krausz 教授和 Reinhard Kienberger 教授的讨论以及他们的实验数据。

参考文献

- 1 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 2001, 291: 1923–1927
- 2 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509–513
- 3 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 2002, 419: 803–807
- 4 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder. *Nature*, 2004, 427: 817–821
- 5 Goulielmakis E, Uiberacker M, Kienberger R, et al. Direct measurement of light waves. *Science*, 2004, 305: 1267–1269
- 6 Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 2006, 314: 443–446
- 7 Spielmann Ch, Burnett N H. Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses. *Science*, 1997, 278: 661–664
- 8 Schnürer M, Spielmann Ch, Wobruschek P, et al. Coherent 0.5-keV X-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser. *Phys Rev Lett*, 1998, 80: 3236–3239
- 9 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Single sub-fs soft-X-ray pulses: Generation and measurement with the atomic transient recorder. *J Mod Opt*, 2005, 52: 261–275
- 10 Mairesse Y, Bohan A D, Frasninski L J, et al. Optimization of attosecond pulse generation. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 163901
- 11 Gaarde M B, Schafer K J. Generating single attosecond pulses via spatial filtering. *Opt Lett*, 2006, 31: 3188–3190
- 12 Schiessl K, Ishikawa K L, Persson E, et al. Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 253903
- 13 Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617
- 14 Tzallas P, Charalambidis D, Papadogiannis N A, et al. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 2003, 426: 267–271
- 15 Quéré F, Itatani J, Yudin G L, et al. Attosecond spectral shearing interferometry. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 073902
- 16 Kobayashi Y, Sekikawa T, Nabekawa Y, et al. 27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics. *Opt Lett*, 1998, 23: 64–66
- 17 Sekikawa T, Ohno T, Yamazaki T, et al. Pulse compression of a high-order harmonic by compensating the atomic dipole phase. *Phys Rev Lett*, 1999, 83: 2564–2567
- 18 Norin J, Mauritsson J, Johansson A, et al. Time-frequency characterization of femtosecond extreme ultraviolet pulses. *Phys Rev Lett*, 2002, 88: 193901
- 19 Mauritsson J, Johnsson P, López-Martens R, et al. Measurement and control of the frequency chirp rate of high-order harmonic pulses. *Phys Rev A*, 2004, 70: 021801
- 20 Mairesse Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys Rev A*, 2005, 71: 011401
- 21 Quéré F, Mairesse Y, Itatani J. Temporal characterization of attosecond XUV fields. *J Mod Opt*, 2005, 52: 339–360
- 22 Mauritsson J, Johnsson P, López-Martens R, et al. Probing temporal aspects of high-order harmonic pulses via multi-colour, multi-photon ionization processes. *J Phys B*, 2005, 38: 2265–2278
- 23 Bandrauk A D, Chelkowski S, Shon N H. Measuring the electric field of few-cycle laser pulses by attosecond cross correlation. *Phys Rev Lett*, 2002, 89: 2839031

- 24 Bandrauk A D, Chelkowski S, Shon N H. How to measure the duration of subfemtosecond xuv laser pulses using asymmetric photoionization. *Phys Rev A*, 2003, 68: 041802
- 25 Constant E, Taranukhin V D, Stolow A, et al. Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses. *Phys Rev A*, 1997, 56: 3870–3878
- 26 Scrinzi A, Geissler M, Brabec T. Attosecond cross correlation technique. *Phys Rev Lett*, 2001, 86: 412–415
- 27 Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera. *Phys Rev Lett*, 2002, 88: 173903
- 28 Kitzler M, Milosevic N, Scrinzi A, et al. Quantum theory of attosecond XUV pulse measurement by laser dressed photoionization. *Phys Rev Lett*, 2002, 88: 173904
- 29 Scrinzi A, Ivanov M Yu, Kienberger R, et al. Attosecond physics. *J Phys B: At Mol Opt Phys*, 2006, 39: R1–R37
- 30 Cavalieri A L, Müller N, Uphues Th, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 2007, 449: 1029–1032
- 31 Yakovlev V S, Bammer F, Scrinzi A. Attosecond streaking measurements. *J Mod Opt*, 2005, 52: 395–410
- 32 Kosik E M, Corner L, Wyatt A S, et al. Complete characterization of attosecond pulses. *J Mod Opt*, 2005, 52: 361–378
- 33 Nisoli M, Sansoni G. New frontiers in attosecond science. *Prog Quant Electr*, 2009, 33: 17–59
- 34 Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117–2132
- 35 Milosevic D B, Ehloltzky F. Coulomb and rescattering effects in above-threshold ionization. *Phys Rev A*, 1998, 58: 3124–3125