

超快速测量实验方法研究

葛愉成

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

2008-07-03 收稿, 2008-08-18 接受

国家自然科学基金(批准号: 10675014)资助项目

摘要 电子显微镜和扫描隧道显微镜使人们能看到原子尺寸的微观世界图像, 极大地促进了化学、生命、材料、表面等学科的发展. 通过提高时间分辨率, 利用特定能量的飞秒和阿秒 X 射线脉冲来探测超快速化学反应, 如光合作用、DNA 和蛋白质分子的合成和分解过程, 已经成为科学发展的前沿研究领域之一. 经过多年的探索, 作者在有关超短 X 射线脉冲产生(发光)、超快速测量(时间分辨率达到飞秒量级, $1\text{ fs} = 10^{-15}\text{ s}$, 即 1 千万亿分之一秒, 和阿秒量级, $1\text{ as} = 10^{-18}\text{ s}$, 即 100 亿亿分之一秒)等前沿领域取得了一些原创性的研究成果, 发现了原子在强激光场中产生飞秒和阿秒 X 射线脉冲的发射特性(即激光相位与 X 射线光子能量之间的关系), 揭示了发射特性的激光脉冲宽度依赖性和载波-包络相位(CEP)依赖性及其 180° 周期结构, 在理论上计算出了飞秒和阿秒 X 射线光电效应的量子增强现象及光电子能谱的干涉图像等. 提出了测量和应用 CEP 的新方法, 建立了应用于超快速测量的光电子能谱相位确定法, 找到了重建脉冲时间结构的光电子能谱微分变换方程、积分变换方程和比例变换方程. 利用这些先进的方法和变换方程, 能极大地提高超快速测量的实验效率和时间精度(理论均方根时间偏差为 2 as). 这些研究成果为超快速测量实验研究和分子电影技术的发展奠定了重要的理论和技术基础.

关键词

高次谐波产生
发射特性
超快速测量
变换方程
激光相位确定法

通常, 我们知道一个化学或生化反应发生了什么, 但并不知道它是如何发生的. 了解它如何发生, 进而调节和控制它, 具有普遍的重要性和必要性. 化学或生化反应动力学过程中, 电子和能量转移一般发生在飞秒和阿秒时间尺度上. 当前, 研究和测量这些超快速反应动力学过程已经成为新的科学前沿之一, 吸引了国际上很多重要实验室的广泛注意. 超快速测量需要时间宽度越来越短的 X 射线脉冲. 超快速测量方法的进步与发展, 开启了人类获得新科学知识的大门. 分子的振动周期通常在百飞秒($1\text{ fs} = 10^{-15}\text{ s}$)量级, 研究分子的形成和分解, 能量、电荷的转移, 原子内部电子的运动过程, 需要短至飞秒和阿秒($1\text{ as} = 10^{-18}\text{ s}$)的 X 射线脉冲以及相应的测量方法. 近 30 多年来, 广泛采用前后两束红外或可见光脉冲进行激发-探测(pump-probe)的皮秒时间分辨快速测量

方法, 在化学反应动力学、生物物理学等基础学科的研究中取得了巨大成功, 已有多位科学家因此获得了诺贝尔奖. 同步辐射、汤姆逊散射和激光激发原子产生高次谐波等超短 X 射线脉冲的出现, 突破了过去只能研究原子外层结构的限制, 进入到原子芯态结构的研究, 从原来对变化结果的研究, 进入到动态变化过程的研究. 但这些研究工作的进展, 有赖于产生、测量和应用飞秒-阿秒 X 射线方法上的创新.

不管是产生还是应用飞秒-阿秒 X 射线, 都需要研究和测量光脉冲的时间特性, 即强度和频率(啁啾)随时间的分布函数. 由于缺乏可以利用的测量飞秒-阿秒 X 射线的非线性光学效应和相应的介质, 目前还不能用仪器直接测量这些参数. 但是, X 射线与物质(如气体原子)相互作用, 会通过光电效应产生光电子. 如果这些光电子同时被激光电场作用, 它的末态

动量将有一定的分布. 这种分布与原子或分子的结构和 X 射线的时间特性及激光参数有关, 理论上可以通过解薛定谔方程得到. 实验上, 通过测量光电子的动量或能量分布(如与激光线性极化方向成 0° 或 180° 的光电子能谱), 可以间接获得飞秒-阿秒 X 射线脉冲本身的时间信息以及化学键或分子轨道的动态变化过程信息. 光电子能谱包含了这些时间信息, 但它与脉冲的时间特性或分子轨道特性之间的关系并不是直观的. 这是由于光电效应是一个典型的量子过程, 光电子能谱具有复杂性. 作者提出了测量飞秒-阿秒 X 射线脉冲时间结构的光电子能谱相位确定法和变换方程, 包括微分方程、积分方程和比例方程. 利用它们可以直接从单次测量得到的光电子能谱重建脉冲或分子轨道的时间信息, 并在理论上显示出很高的精度, 均方根时间偏差理论上可以达到 2 as.

1 超快速测量技术发展趋势

对于 X 射线脉冲时间信息的测量, 在不同的时间尺度上有不同的测量方法和测量技术. 对于纳秒($1\text{ ns} = 10^{-9}\text{ s}$)级脉冲, 可以用闪烁探测器或固体探测器以及常规的电子学测量. 对于皮秒($1\text{ ps} = 10^{-12}\text{ s}$)级脉冲, 可以用成熟的条纹相机技术测量. 对于阿秒($1\text{ as} = 10^{-18}\text{ s}$)级 X 射线脉冲, 主要用飞秒激光脉冲与 X 射线脉冲之间的交叉关联(cross correlation)技术进行测量. 介于皮秒和阿秒之间的飞秒 X 射线脉冲的测量, 目前仍是一种挑战.

英、美、德等发达国家对发展超快速测量技术非常重视. 自从Drescher等人^[1]2001年报道了测量得到的(650 ± 150) as, 90 eV能量的真空超紫外线(extreme ultra-violet, XUV)脉冲, 并在2002年被评为*Science*十大科学突破之一以来, 直至Kienberger等人^[2]2004年报道了测量得到的250 as宽度XUV脉冲, 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^[3,4]. 迄今为止, 已经在原理上, 特别是在较低能量范围内, 提出了几种比较重要的测量阿秒XUV脉冲时间宽度的方法. 首先, 用交叉关联技术测量阿秒XUV脉冲时间宽度的方法^[5-8], 其理论上的时间分辨能力达到约 100 as^[7-9]. 但是, 在实验上测量和理论上处理数据时, 普遍采取通过理论计算光电子谱, 并使之拟合时间分辨实验谱的方法来提取高斯形脉冲的宽度参数, 而不能直接从单次测量得到的光电子能谱重建待测脉冲频率(光子能量)和强度的时间

分布. 这种方法测量效率低, 误差大, 使得超快速测量技术的发展受到了很大的限制. 仔细分析Constant等人^[5]用于测量超短真空紫外线XUV脉冲的方法, 以及Itatani等人^[7]和Kitzler等人^[8]提出的阿秒条纹相机的原理, 有很多理论、技术和数据处理上的难题. 例如, 在Constant等人^[5]的方案中, 需要用圆极化的激光脉冲. 这带来了对同一束激光的分光和同步等技术难题, 并且需要解决具有一定角分布光电子的测量问题. 其次, 由Quéré等人^[10]在理论上提出的阿秒SPIDER (spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction)技术, 它需要对阿秒XUV单脉冲进行分光, 使之成为两个等价的、并具有一定时间差的单脉冲序列. 通过测量和分析这两个单脉冲激发同一束气体原子产生的光电子之间的干涉图像获取XUV单脉冲的时间特性. 这种测量方法主要是针对几十阿秒时间宽度的脉冲, 在技术上要求很高, 需要对单脉冲进行分光、聚焦和高能量分辨率电子谱测量. 最后, 使用由传统低能量光子领域中的频率分辨光栅原理(frequency-resolved optical gating, FROG)发展起来的阿秒FROG^[11]技术, 在实验上测量得到的阿秒脉冲宽度已经从130 as ($\sim 30\text{ eV XUV}$, 2006年)^[12]刷新到80 as ($\sim 80\text{ eV XUV}$, 2008年)^[13]. 然而, 通常需要在几十分钟时间内, 测量几十至几百个相对于激光脉冲具有不同延迟时间的XUV脉冲激发气体原子产生的光电子时间分辨谱、几千次至几十万次迭代计算才能重建这些超短脉冲的时间信息. 这不仅使实验工作量大、时间长、计算复杂且冗长, 而且对控制测量期间出现的脉冲时间抖动、激光载波-包络相位(carrier-envelope phase, CEP)和激光脉冲强度等参数的涨落及漂移提出非常严格的要求.

从超短脉冲的产生和应用、超快速测量技术的发展来看, 实验上将得到更短时间宽度、更宽能量范围(光子能量从几十电子伏特的XUV到千电子伏特量级的软X射线)的阿秒脉冲, 同时需要更为简单有效的测量和脉冲重建方法. 本文系统地介绍作者近年来对飞秒-阿秒X射线脉冲产生和测量方法的研究成果, 从中可看出一些不同问题之间的内在联系. 通过计算得到了原子产生高次谐波辐射的光子能量与激光脉冲宽度和CEP之间的依赖关系, 它们对于分离阿秒单脉冲具有重要的指导意义. 用量子力学数值计算方法, 研究证明了分别在文献^[14-16]中提出的测量飞秒-阿秒X射线脉冲时间结构的微分变换方程、积分

变换方程和比例变换方程. 这三组变换方程为进一步开展与超快速测量相关的理论和实验研究, 奠定了很好的数理基础.

2 阿秒和飞秒 X 射线脉冲产生原理

高次谐波产生(high-order harmonic generation, HHG)原理与原子在强激光电场中的非微扰过程有关. 当原子受到强激光电场作用时, 由于激光的波长远大于原子的尺寸, 势能位形会发生严重的变化. 此时, 价电子将有可能通过隧道效应, 越过较低的势垒, 离开原子而成为自由电子. 价电子离开原子后, 将受到激光电场的驱动, 其运动方向和能量会随着激光电场的变化而变化. 当电子与离子相遇并满足一定的条件时, 再次结合成原子, 并以辐射的形式放出电离能和电子从电场中获得的多余能量 E_{kin} . 理论和实验都证明, 只有奇数次谐波辐射产生, 即辐射的光子能量总是激光光子能量的奇数倍. 辐射能谱表现为低能端强、高能端突然截止、中间过渡段较为平坦的结构, 其中截止能量一般可以表示为 $N_{max} \cdot \hbar \omega_L = 3.17U_p + I_p$, 式中 N_{max} 为在实验上可以测量得到的谐波辐射的最高阶次, I_p 为原子的电离能. $U_p = e^2 E_0^2 / 4\epsilon_0 m_e \omega_L^2$ 为激光电场的有质动力势, 与激光功率密度成正比, 其中 ω_L 为激光角频率, E_0 为激光电场强度峰值, m_e 为电子质量, 电子电荷量为 $-e$, ϵ_0 为真空介电常数. 例如, 对于波长为 750 nm 的激光, 当强度达到 $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 时, $U_p = 2.1 \text{ eV}$. 当谐波阶次较高时, 其能量达到软 X 射线或水窗波段 X 射线的能量范围, 并在激光的某些相位点产生 X 射线脉冲. 作者通过大量的量子力学计算和研究, 揭示了许多有趣的自

然现象.

2.1 HHG 发射特性的激光脉冲宽度依赖性

图 1(a)中实线表示宽度 τ_L 为 2 个激光周期(4π 弧度(rad), 半高宽)的激光电场 $F(t)\cos(\omega_L t + \Phi)$ 随时间的变化(幅度 1). 虚线为激光脉冲包络形状函数 $F(t)$. Φ 表示激光载波-包络相位. 图 1(b)是计算得到的 $\Phi = 15^\circ$ 时的 HHG 发射特性^[17](用 $E_{kin}-t$ 表示, t 为 HHG 产生时刻, 光子能量 $\hbar \omega_X = E_{kin} + I_p$). E_0 和 E_1 分别表示分布单脉冲对应的最大 E_{kin} 和最小 E_{kin} . 由图 1(b)可见, HHG 发射特性由很多分布脉冲组成, 总的时间宽度与激光脉冲的时间宽度相同. 每个分布脉冲由具有一定时间宽度和能量范围的多组轨迹组成. 每个轨迹对应不同的价电子产生和复合时刻的时间间隔范围, 如具有最高峰值能量的轨迹表示价电子产生和复合时间间隔小于一个激光周期, 峰值能量较小的轨迹表示价电子产生和复合时间间隔大于一个激光周期且小于二个激光周期. 实际产生的阿秒脉冲还与介质和传输有关.

图 2(a)所示为计算得到的当 $\Phi = 0^\circ$ 时参数 E_0 和 E_1 以及分布脉冲带宽 $\Delta E = E_0 - E_1$ 对于激光脉冲宽度 τ_L 的依赖性^[17]. 图 2(b)显示了分布单脉冲相位参数(起始时刻 t_1 、峰位 t_0 、结束时刻 t_2 和时间宽度 $\Delta t = t_2 - t_1$)对于激光脉冲宽度 τ_L 的依赖性. 很明显, 对于少周期激光脉冲, HHG 谱的最高截止能量明显小于 $N_{max} \cdot \hbar \omega_L = 3.17U_p + I_p$. 但随着激光脉冲宽度的增加, 无论是参数 $E_0(E_1)$ 还是 $t_0(t_1, t_2)$ 都趋向极限位置. 此时分布单脉冲消失, 出现阿秒脉冲序列(对应无限长的激光脉冲产生的发射特性).

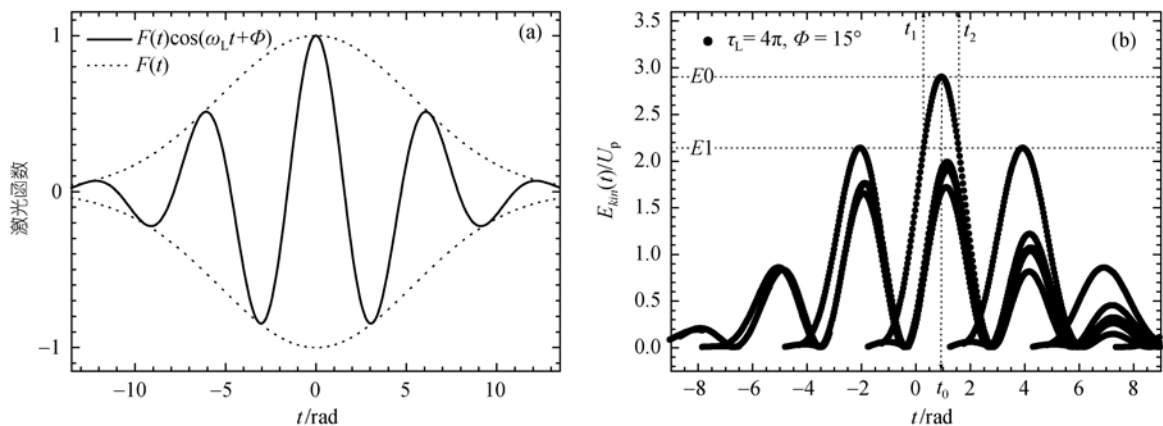


图 1 激光函数(a)和 HHG 发射特性(b)

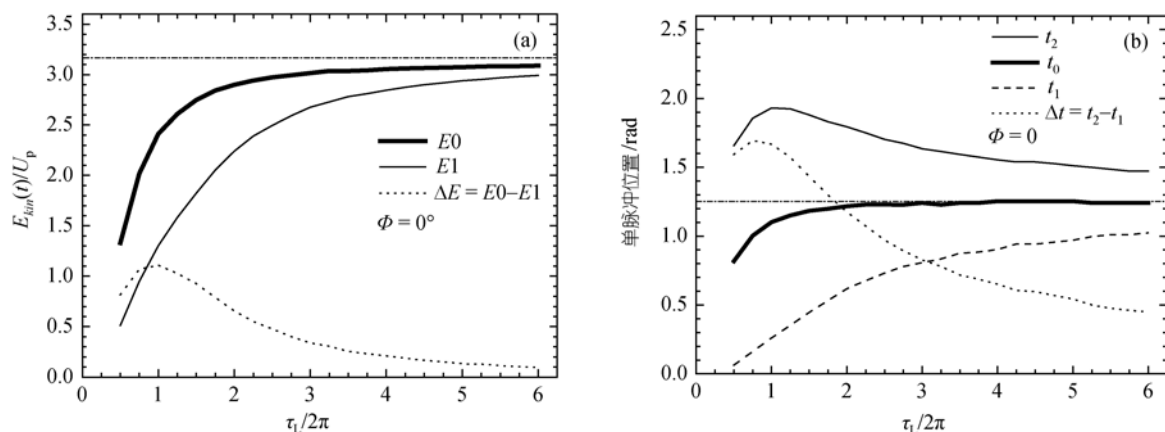


图 2 $\phi = 0^\circ$ 激光产生的发射特性单脉冲参数的激光脉冲宽度依赖性

(a) 单脉冲光子能量范围(E_1, E_0)和带宽($\Delta E = E_0 - E_1$)对激光脉冲宽度依赖性; (b) 单脉冲时间参数(起始时刻 t_1 、峰值 t_0 、结束时刻 t_2 和时间宽度 $\Delta t = t_2 - t_1$)对激光脉冲宽度依赖性

2.2 HHG 发射特性的 CEP 依赖性

图 3(a)和(b)分别显示了宽度为 2 周期 $\tau_L = 4\pi$ rad、不同 CEP 的激光脉冲产生的发射特性单脉冲的能量信息和时间位置信息^[18]。从图中可以看出, 随着 CEP 的增加, E_0 , E_1 和 ΔE 都会发生变化, 并表现出间隔 180° 的周期结构。 E_0 随着 ϕ 的增加而较快地变化, 极限位置是 $2.90U_p$ 。 E_1 和 ΔE 变化较快。 E_0 和 ΔE 的局部极值位置相同, 在 -165° , 15° 和 195° 处达到最大值, 在 -255° , -75° 和 105° 处达到最小值。 与此相反, E_1 在 -165° , 15° 和 195° 处达到最小值, 在 -255° , -75° 和 105° 处达到最大值。 ΔE 在每个单调变化区域近似为线性函数。 从图 3(b)可以看出, 当 ϕ 变化时, 分布单脉冲中心位置 t_0 (厚实线)、起始位置 t_1 (长划线) 和终止位置 t_2 (细实线) 以及它们的宽度 $\Delta t = t_2 - t_1$ (点线) 的变化

非常明显, 并表现出间隔 180° 的周期结构。 Δt 在 -165° , 15° 和 195° 处达到最大值, 在 -255° , -75° 和 105° 处达到最小值。 ϕ 在 $-75^\circ \sim 105^\circ$ 的单调变化区间内, 分布单脉冲中心位置 t_0 几乎线性变化。 ϕ 在 -255° , -75° , 105° 及 285° 等处, t_0 , t_1 和 t_2 三条曲线发生转折。 在每个线性变化周期中, t_0 的变化范围正好为半个激光振荡周期。 发射特性单脉冲参数 CEP 依赖性的 180° 周期结构具有普遍性。 如果在最高能量附近用窄带滤波器选择阿秒单脉冲, 那么其激光 CEP 值将被锁定在相对应的范围内。 因此, HHG 发射特性的 CEP 依赖性在实验上能被用来显著地降低激光脉冲 CEP 不稳定性对于光电子能谱和测量结果的影响。

2.3 阿秒 X 射线脉冲光电效应的量子增强现象

图 4(a)和(b)表示脉冲时间宽度(半高宽) τ_X 分别为

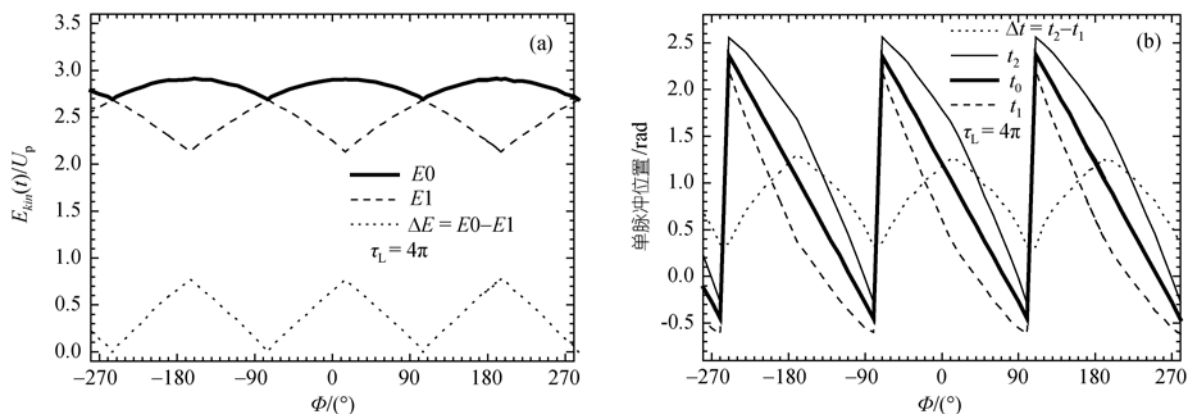
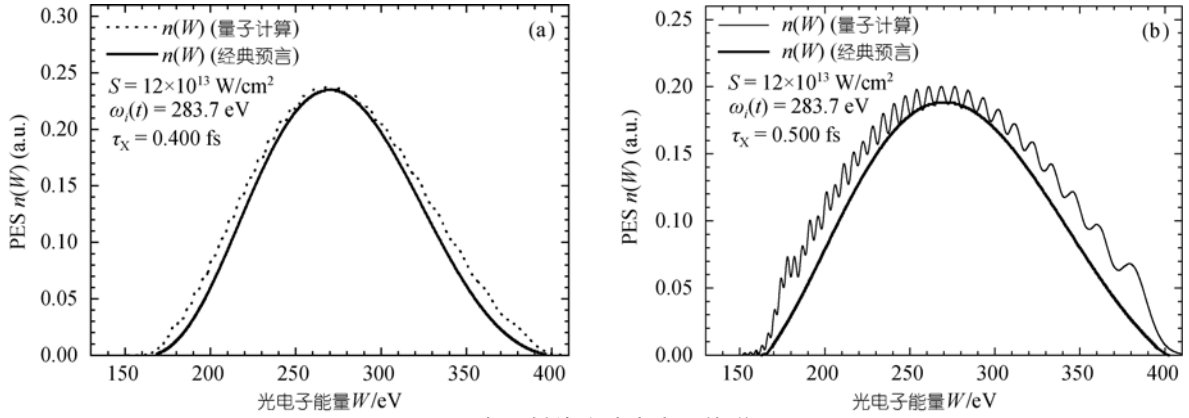


图 3 宽度为 $\tau_L = 4\pi$ rad 的激光脉冲产生的发射特性单脉冲参数的 CEP 依赖性

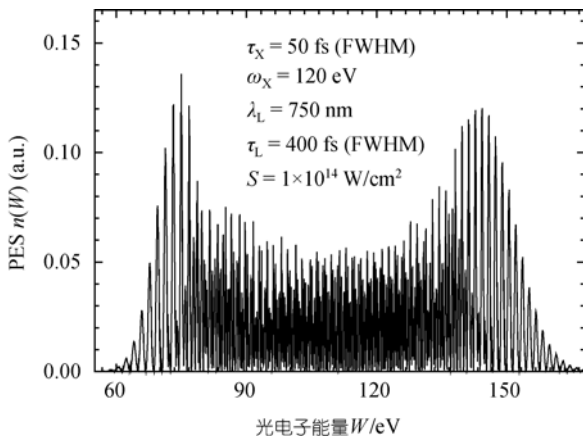
(a) 单脉冲光子能量范围(E_1, E_0)和带宽($\Delta E = E_0 - E_1$)对 CEP 依赖性; (b) 单脉冲时间参数(起始时刻 t_1 、峰值 t_0 、结束时刻 t_2 和时间宽度 $\Delta t = t_2 - t_1$)对 CEP 依赖性

图4 阿秒 X 射线脉冲光电子能谱 $n(W)$ (a) $\tau_X = 400$ as; (b) $\tau_X = 500$ as

400 as 和 500 as、能量为 283.7 eV 单色 X 射线脉冲与 7 fs、波长 750 nm 激光(能量密度 $S = 12 \times 10^{13}$ W/cm²)交叉关联后, 在 $\theta = 0^\circ$ 即在激光电场线性极化方向上计算得到的氢原子光电子能谱 $n(W)$ (定义为单位能量内的光电子数)^[19]. 图 4(a) 中虚线和图 4(b) 中细线表示量子力学计算结果, 厚实线表示经典预言值. 光电效应的量子增强现象非常明显. 随着 X 射线脉冲宽度的增加, 光电子能谱出现规则的涨落结构.

2.4 飞秒 X 射线脉冲光电子能谱的干涉图像

图 5 表示脉冲时间宽度(半高宽) τ_X 分别为 50 fs、能量为 120 eV 单色 X 射线与 400 fs、750 nm 激光(能量密度 $S = 1 \times 10^{14}$ W/cm²)交叉关联后在 $\theta = 0^\circ$ 方向上计算得到的氢原子光电子能谱 $n(W)$ ^[20]. 很明显, 光电子之间的量子干涉效应非常明显. 能谱表现出梳状结构, 由很多个紧密相邻的谱分布组成. 单峰高度、形状及相邻单峰之间的能量间隔(并不严格等于激光光子能量)等, 与激光及 X 射线脉冲的参数有关.

图5 飞秒 X 射线脉冲激发氢原子产生的光电子能谱 $n(W)$

这是一种非常有趣的现象, 我们对此正在进行深入细致的研究.

3 新的飞秒和阿秒 X 射线脉冲时间结构测量方法

通过以上介绍, 我们看到少周期强激光产生高次谐波辐射和阿秒及飞秒 X 射线与原子作用所产生的很多奇妙的现象. 本节在理论上系统地给出 X 射线的时间特性与光电子能谱变换方程之间的关系. 用这些变换方程, 可以快速地从测量得到的光电子能谱重建 X 射线的脉冲时间结构. 当然, 用这些变换方程, 也可以反过来深入研究上述现象.

3.1 X 射线脉冲与原子作用产生的光电子能谱

X 射线与线性极化激光脉冲共同激发气体原子产生光电子, 电子的运动满足如下含时间(t)的薛定谔方程(使用原子单位):

$$i\partial_t \Psi(\mathbf{r}) = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 - \frac{1}{r} - \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \right] \Psi(\mathbf{r}), \quad (1)$$

其中 $\mathbf{r} = (x, y, z)$ 为电子的空间坐标, $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_L(t) + \mathbf{E}_X(t)$, $\mathbf{E}_L(t)$ 和 $\mathbf{E}_X(t)$ 分别为激光电场强度和 X 射线电场强度, $\Psi(\mathbf{r})$ 为电子的波函数. 从基态 $|0\rangle$ 跃迁到速度本征态 $|\mathbf{v}\rangle$ 的光电子, 是在(1)式所示原子的库仑场、激光电场和 X 射线电场共同作用下产生的. 理论上, $\theta = 0^\circ$ 向上的光电子跃迁幅度可用下式表示:

$$b(\mathbf{v}) = i \int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) d_x[\mathbf{v} - \mathbf{A}(t)] \times \exp \left\{ -i \int_t^{\infty} dt' \left[\frac{[\mathbf{v} + \mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t')]^2}{2} + I_p \right] \right\}, \quad (2)$$

这里 $E(t) = -\partial_t A(t)$, $A(t) = A_L(t) + A_X(t)$ 为矢量势. $d_x [v - A(t)] = \langle 0 | v - A(t) \rangle_x$ 为跃迁矩阵元在极化方向(即 x 轴方向)的投影. 从上式可以看出, 只要基态波函数、X 射线的时间特性和激光的时间特性已知, 光电子的能谱或其跃迁几率 $|b(v)|^2$ 将是确定的. 或者, 只要知道上述三组参数中的其中两组, 就可以通过测量光电子能谱、分析计算实验数据的方法来研究剩余的那组参数, 这就是超快速测量的理论基础. 由于激光的波长较长, 它的时间特性用现有的技术比较容易测量. 对于特定的气体原子的结构也是清楚的, 或者可以做适当的近似, 因此通过测量光电子能谱就可以知道 X 射线的时间特性. 但是, (2)式是一个复杂的积分方程, 能谱与 X 射线时间特性之间并不能用简单函数直观地表示. 能谱的变换方程解决了这个难题, 并且避免了大量的数值计算.

3.2 飞秒 X 射线脉冲时间结构测量

将光电子能谱直接换算成速度谱 $n(V)$, 则测量窄带飞秒 X 射线脉冲的微分变换方程^[14]如下式所示:

$$\begin{cases} V = V_i + 2\sqrt{\frac{U_p}{m_e}} F(t), \\ f(t) = 8\mu_1 \frac{U_p}{m_e} \frac{dF^2(t)}{dt} \frac{dn(V)}{dV}, \end{cases} \quad (3)$$

其中 μ , t , V , V_i 和 $f(t)$ 分别表示常数、时间参数、速度、初始速度和 X 射线脉冲时间结构, μ_1 为常数, 可以简单设其为 1. 变换方程(3)的第一式, 用于从光电子的速度值 V 计算出它的产生(即电离)时刻, 当然这样的结果只代表一种分布值, 并不与量子力学的测不准关系相矛盾(测不准关系针对单个电子而言). 第二式用于直接从速度谱计算出该时刻对应的脉冲强度值

$f(t)$. 该式包含了激光的强度和频率信息($U_p = e^2 E_0^2 / 4\varepsilon_0 m_e \omega_L^2$, 激光强度 $S = \varepsilon_0 c E_0^2 / 2 \propto U_p$)、激光脉冲包络形状 $F(t)$ 平方项的时间微商 $dF^2(t)/dt$ 和光电子速度谱的微分项 $dn(V)/dV$. $F(t)$ 的形状需要实际测量, 往往采用高斯函数或正割形函数或其他更为实际的函数形式. 从(3)式可以看出, 变换方程建立了待测量 X 射线脉冲的时间特性、激光脉冲时间特性和实验测量得到的光电子速度谱(或能谱)之间的特定关系. 因此, 只要知道其中两种参数, 就可以从上述方程组解出另一种参数. 以飞秒 X 射线脉冲测量为例, 图 6(a)表示能量为 407.9 eV、时间宽度 $\tau_X = 50$ fs(半高宽)的高斯形窄带 X 射线脉冲与 750 nm 激光激发氢原子产生的光电子能谱. 图 6(b)中实线表示 X 射线脉冲强度分布, 圆圈表示用变换方程重建得到的强度时间分布. 两者符合得非常好.

实际测量时, 飞秒 X 射线脉冲应该定位在激光脉冲包络的下降沿(或上升沿)的适当位置^[20]. 这需要根据前次测量结果来调整 X 射线脉冲与激光脉冲的相对延迟时间(在技术上调节激光脉冲或 X 射线脉冲或两者的光程), 通过有限次的测量和调整就可以达到目的.

3.3 宽带阿秒 X 射线脉冲时间结构测量

对于时间宽度小于半个激光周期、光子频率是一个时间分布函数的宽带阿秒 X 射线脉冲, 可以通过实验测量 $\theta = 0^\circ$ 或 180° 方向光电子能谱重建其强度和频率时间分布曲线. 为此, 需要用两种不同的激光强度(S_L (低)和 S_H (高)), 对应有质动力势分别为 U_p^L 和 U_p^H . 每个光电子产生时刻 t 和能谱位置 W 满足如下的积分方程^[15]:

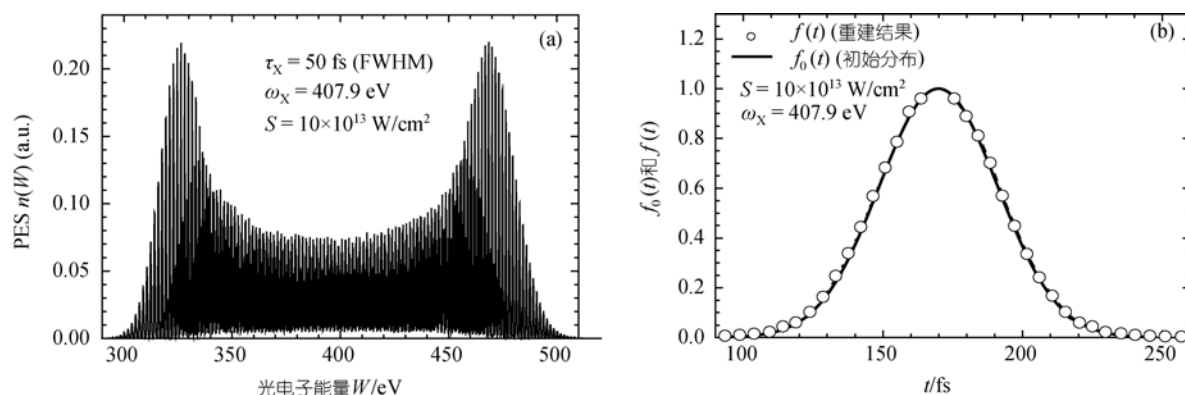


图 6 飞秒 X 射线激发氢原子产生的光电子能谱(a)和用变换方程重建脉冲强度时间分布(b)

$$\int_{t_s}^t f_0(t_1) dt_1 = \mu_2 \int_{W_{\min}}^W n(W_1) dW_1, \quad (4)$$

其中 $f_0(t_1)$ 表示初始脉冲时间结构, t_s , $W_{\min}$ 分别表示脉冲时间起点和能谱低能端位置, μ_2 为常数, 可以简单设其为 1. 因此, 只要在不同激光强度下测量得到的归一化的光电子能谱的能量积分值相同(但对应不同的能谱位置 W^L 和 W^H), 就可以用如下方程组具体地计算出光电子产生时刻 t 和初始动能 $W_i(t)$:

$$\begin{cases} F(t) = \sin(\varpi_L t) = \pm \frac{\sqrt{W^H} - \sqrt{W^L}}{\sqrt{2U_p^H} - \sqrt{2U_p^L}}, \\ W_i(t) = \left[\sqrt{W^H} - \sqrt{2U_p^H} \cdot \frac{\sqrt{W^H} - \sqrt{W^L}}{\sqrt{2U_p^H} - \sqrt{2U_p^L}} \right], \end{cases} \quad (5)$$

其中假设 $\Phi = 0^\circ$, 而 $\pm$ 号分别对应 $\theta = 0^\circ (+)$ 或 $180^\circ (-)$. X 射线光子的能量 $\omega_i(t) = W_i(t) + I_p$, 强度分布

$$f(t) = \mu_2 \frac{dW(t)}{dt} n(W), \quad (6)$$

其中 $W(t)$ 为激光电场对光电子能量的调制函数, 即

$$W(t) = W_i(t) + 2U_p F^2(t) \sin^2 \varpi_L t + \sqrt{8U_p W_i(t)} F(t) \sin \varpi_L t.$$

图 7(a) 和 (b) 中圆圈分别显示了用强度为 4×10^{13} W/cm²、波长 750 nm、时间宽度为 7 fs(半高宽)的激光脉冲, 测量能量带宽为 23.7 eV、最高光子能量 $\hbar\omega_X = 283.7$ eV(以下为简单起见设 $\hbar = 1$)、 $\tau_X = 300$ as(半高宽)的 X 射线脉冲的计算结果, 它完全重建了原始分布(实线), 且均方根能量偏差(RMS $\Delta\omega$)和均方根时间偏差(RMS Δt)分别为 0.26 eV 和 6 as. 如果不考虑

脉冲开始和/或结尾处几个重建数据, 则理论上的均放根时间偏差为 2 as. 但这只是方法本身带来的误差, 实际误差还包括激光和阿秒脉冲时间抖动、激光强度及 CEP 涨落和测量系统不稳定性等因素造成的误差. 分析表明, 就当前的技术而言, 由于前者理论误差远小于实验误差, 因此最后的脉冲重建结果可以认为最大程度上反映了由于激光和阿秒脉冲时间抖动、激光强度及 CEP 涨落和测量系统不稳定性等因素造成的误差.

一般地, 宽带阿秒 X 射线脉冲需要定位在激光载波相位为 0° ($t = 0$ 当 $\Phi = 0^\circ$) 附近的半个激光周期内(电场单调上升). 与飞秒测量相似, 需要根据前次测量结果结合脉冲的光程调节等技术措施来达到目的.

3.4 窄带阿秒 X 射线脉冲时间结构测量

对于时间宽度小于半个激光周期的阿秒窄带 X 射线脉冲, 不需要用两种激光强度测量, 可以简单地从光电子能谱 $n(W)$ 用如下方程组^[15]确定每个光电子的产生时刻 t 和对应的脉冲强度 $f(t)$:

$$\begin{cases} \sin(\varpi_L t) = \frac{\sqrt{m_e \varepsilon_0 c}}{e} \frac{\varpi_L}{\sqrt{S}} \frac{1}{F(t-t_0)} (\sqrt{W} - \sqrt{W_i}), \\ f(t) = \mu_3 n(W) \left[\varpi_L \sqrt{8U_p W_i} F(t-t_0) \cos(\varpi_L t) \right], \end{cases} \quad (7)$$

其中 ε_0 , c 和 W 分别为真空介电常数、真空光速和光电子能量, $\Phi = \varpi_L t_0$. 上式第二个变换方程包含了能谱的比例项 $\mu_3 n(W)$, 其中 μ_3 为常数, 可以简单设其为 1. 图 8(a) 和 (b) 中虚线分别显示了用强度为 4×10^{13} W/cm²、波长 750 nm、时间宽度为 7 fs(半高宽)的激光脉冲, 测量能量带宽 $\Delta W = 5$ eV 的 400 as(半高宽)、二种不同光子能量(90 和 283.7 eV) X 射线脉冲的计算

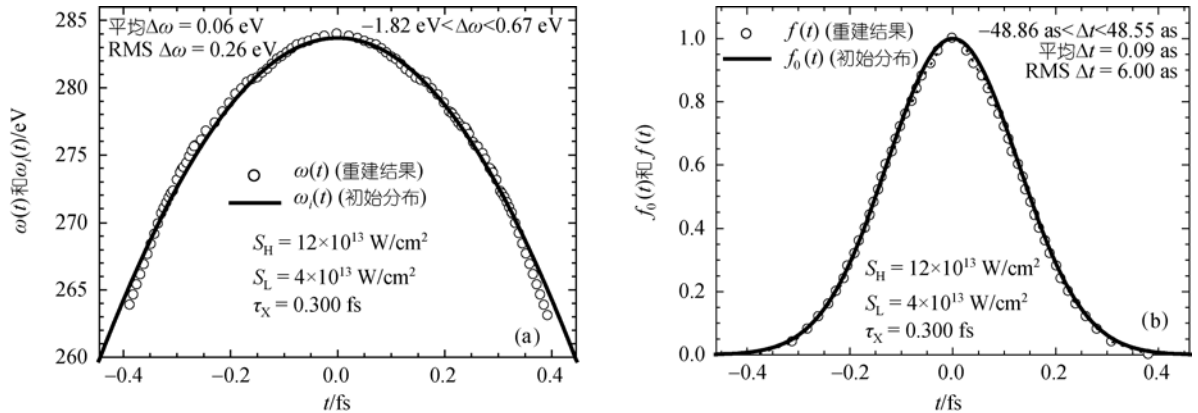


图 7 阿秒 X 射线脉冲频率时间分布函数(实线, 原始分布; 圆圈, 重建结果)(a)和脉冲强度时间分布函数(实线, 原始分布; 圆圈, 重建结果)(b)

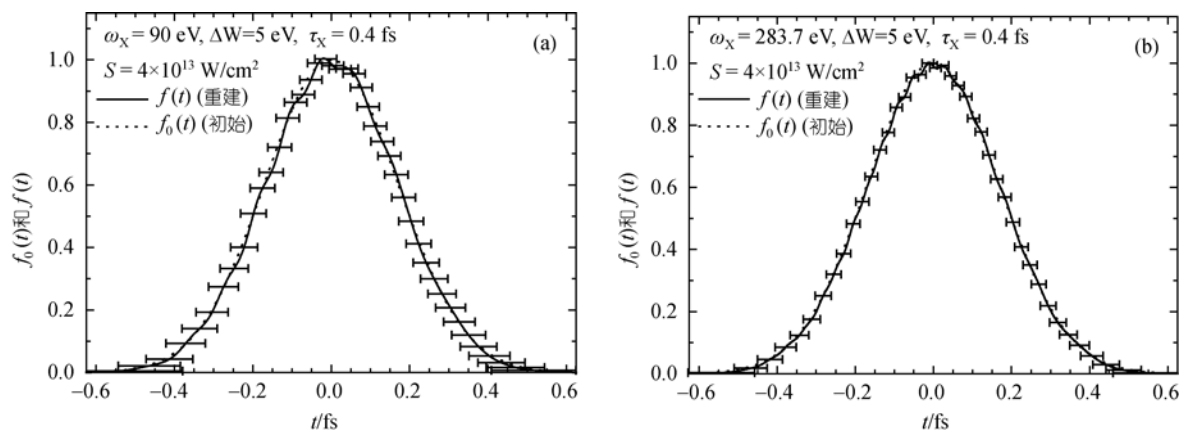


图8 窄带阿秒 X 射线脉冲强度分布时间函数(实线, 原始分布; 虚线, 重建结果)
(a) $\omega_X = 90$ eV; (b) $\omega_X = 283.7$ eV

结果, 它完全重建了原始分布(实线, 与重建结果虚线几乎完全重叠). 误差棒长度表示用变换方程重建得到的脉冲时间特性的时间不确定性, 与能量带宽 ΔW 成正比, 它是方法本身带来的误差.

实验上窄带阿秒 X 射线脉冲的定位与测量宽带阿秒 X 射线脉冲相同.

4 光电子能谱测量方法

图9是用交叉关联技术测量阿秒-飞秒 X 射线时间特性的实验示意图. 飞秒-阿秒 X 射线脉冲和激光束共同激发气体原子产生光电子(即激光辅助 X 射线光电离), 当激光脉冲消失后, 由经典力学可知, 其最终能量可以表示为

$$W(t) = W_i(t) + 2U_p F^2(t) \sin^2(\omega_L t + \Phi) \cos 2\theta + \sqrt{8U_p W_i(t)} F(t) \sin(\omega_L t + \Phi) \cos \theta, \quad (8)$$

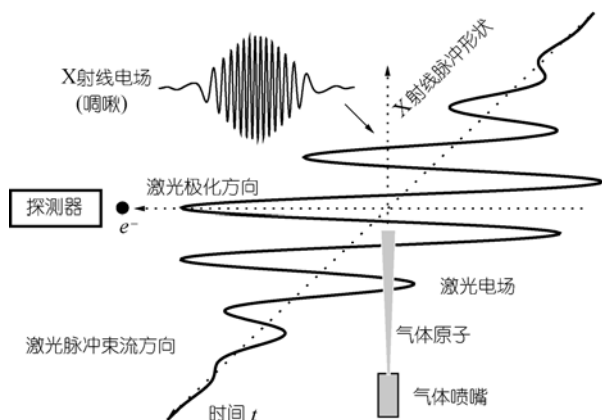


图9 用交叉关联技术测量阿秒-飞秒 X 射线时间特性示意图

式中 t 表示光电子产生时刻. θ 为探测器(光电子谱仪)的观测角, 即光电子飞行方向与激光线性极化方向所夹的角. 对于相同的产生时刻 t , $\theta = 0^\circ$ 的光电子相比其他角度具有最大能量变化(相对于初始能量 $W_i(t)$), 因此在 $\theta = 0^\circ$ 测量得到的光电子能谱的范围最宽. $\theta = 180^\circ$ 情形与此类似. 另外, 当 $\theta = 0^\circ$ 或 $\theta = 180^\circ$ 时, $\partial W(t)/\partial \theta = 0$. 这表明此时观测角度的变化对于光电子终态能量的影响达到最小, 即可以用较大的接收角测量光电子能谱. 在其他角度测量得到的光电子能谱, 一定接收角下不同方向的光电子能量变化大, 会直接影响能谱的单纯性和用变换方程重建脉冲所得结果的准确性.

几百电子伏特以内甚至千电子伏特量级能量的光电子, 可以用飞行时间法(time-of-flight, TOF)测量. 假设光电子在长度为 L 的直线管道中的飞行时间为 T , 则其能量为

$$E = \frac{1}{2} m_e \left(\frac{L}{T} \right)^2. \quad (9)$$

光电子能量的测量误差主要由飞行时间的测量误差决定, 即 $\Delta E/E \approx 2\Delta T/T$, 其中 ΔE 和 ΔT 分别为测量光电子的能量误差和飞行时间误差. 在实验上, 可以用微通道板(micro-channel plate, MCP)探测光电子, 如图10(a)所示. 两面加高压 HV 的微通道板由数量巨大、互相平行、直径只有微米量级、在入射电子作用下能产生大量次级电子的微管(通道)组成. 它有很好的时间特性(纳秒级上升时间)和非常高的增益(10^7 以上), 因此用它来探测光电子并作为测量飞行时间的定时信号. 对于 300~500 eV 的光电子, 飞行 50 cm 距离的时间为 49~37 ns, 可以用时间-幅度转换

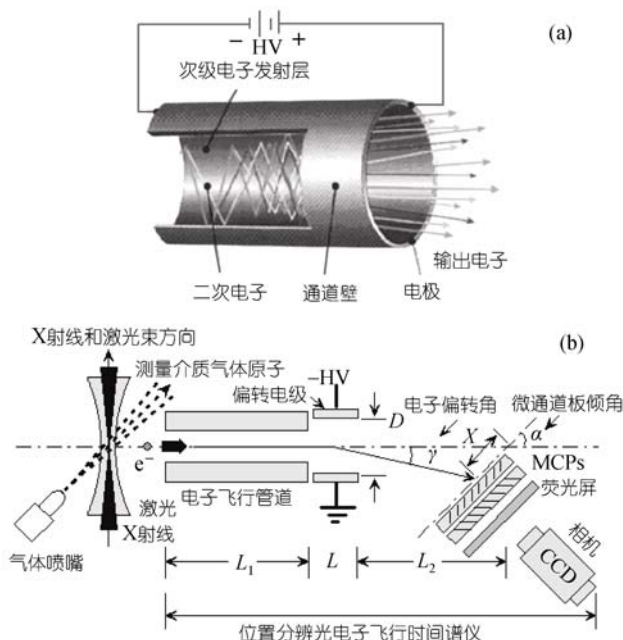


图 10 光电子能谱测量

(a) 微通道板电子倍增原理; (b) 位置分辨光电子谱仪结构示意图。 L_1 , 光电子飞行距离; L , 平板偏转电极长度; D , 偏转电极间距; HV , 高压(偏转电压); L_2 , MCP 与偏转电极之间的距离; γ , 光电子偏转角度; α , MCP 倾斜角度

器测量。

对于用通常的飞行时间法测量光电子的能谱, 有一个技术上的困难。因为微通道板的增益很高, 速度快的电子会抢先触发微通道板, 使得后续较慢速度的电子被掩盖在输出信号中。为解决这个问题, 我们提出一种位置分辨光电子飞行时间谱仪的设计方案^[14]。这种谱仪在光电子飞行路径上加上偏转电场或磁场, 使得能量有差别的光电子飞行到大面积微通道板探测器的不同位置上, 并激发出与之相连的荧光屏上的闪光信号, 如图 10(b)所示。当选择合适的电磁场参数时, 较快和较慢的电子会偏离微通道板探测区, 而其他电子的能量将与闪光位置信号相对应。通过微通道板闪光位置读出系统, 可以确定我们所要测量的能量差别很小的光电子, 从而提高谱仪的能量分辨率。选择电场偏转还是磁场偏转, 微通道板的位置和倾斜角度, 需要通过计算和实验测量来最终确定。为了获得稳定的偏转电场和磁场, 需要高稳定度的电源。

精确测量光电子能谱的关键问题是如何提高谱仪的能量分辨率, 降低本底, 抑制噪声等。因此, 需要合理选取光电子飞行管道的长度, 控制偏转电场

或磁场的稳定性, 防止干扰, 抑制微通道板的噪声。谱仪的探测效率主要由谱仪接收立体角(很小)和微通道板的探测效率决定。对于几百电子伏特能量的电子, 微通道板的量子效率一般可以做到 10%左右。提高微通道板灵敏面的均匀性和电子转换效率, 有助于提高光电子谱的质量。

5 总结

超短 X 射线光源的发展将朝着更快(脉冲重复频率)、更短(脉冲时间宽度)、更纯(脉冲能量单色性即带宽)、更高(脉冲能量密度即亮度)和更稳(激光及 X 射线脉冲参量可控)的方向发展。阿秒 X 射线脉冲将是研究超快速化学反应动力学过程的重要技术手段。本文系统地给出了 HHG 发射特性的激光脉冲宽度依赖性和 CEP 依赖性。这些结果有助于深入了解 HHG 原理和原子在强激光电场中的动力学行为, 并作为选择和优化飞秒-阿秒脉冲的新的参考数据。HHG 发射特性的 CEP 依赖性表现出 180° 周期结构, 这种特点能被用来在实验上分析和测量激光强度和 CEP 等参数的分布值。

在量子力学计算基础上研究分析了飞秒-阿秒 X 射线脉冲的时间特性与光电子能谱及变换方程之间的关系。阿秒 X 射线的光电子能谱表现出明显的量子增强现象。飞秒 X 射线的光电子能谱表现出梳状分立谱结构, 原因是光电子波包之间的量子干涉效应。将核物理实验方法用到测量低能量光电子的能谱, 实现了间接测量 X 射线时间特性的目的。用飞行时间和位置分辨相结合的方法测量光电子的能谱, 能显著提高谱仪的能量分辨率和能谱的质量。在 $\theta = 0^\circ$ 或 $\theta = 180^\circ$ 方向上测量光电子能谱, 具有接收角大、能谱范围宽和对谱仪能量分辨率要求低等好处。研制先进的高分辨率光电子谱仪是当前超快速测量实验研究的重要工作。

用光电子能谱积分变换方程和激光相位确定法, 当脉冲调整到相对于激光脉冲合适的时间位置时, 只需一次测量就可以准确还原宽带阿秒 X 射线脉冲的频率和强度时间信息。大量计算表明, 这种方法在理论上具有非常高的测量精度, 频率均方根偏差小于 0.8 eV, 时间均方根偏差小于 2 as。脉冲重建结果的理论偏差是由量子效应引起的。对于窄带阿秒(飞秒)X 射线脉冲, 只需光电子能谱比例(微分)方程即可还原脉冲形状, 方法本身的时间误差与 X 射线能量

带宽成正比. 与其他方法相比, 光电子能谱的变换方程方法具有如下一些优点: (1) 测量方案简单, 技术要求低. 不需要专门对待测脉冲进行分光、同步等技术环节. 脉冲的定位只需要有限次的测量, 就可以根据前后测量结果找到相对于激光载波相位(阿秒情形)或包络(飞秒情形)合适的时间位置. (2) 测量效率高, 直接从一次测量得到的光电子能谱数据重建阿秒-飞秒 X 射线脉冲的原始时间信息. (3) 测量时间短, 不需要时间分辨测量, 因此得到的光电子谱质量高. 同时, 激光脉冲的强度、CEP 等参数和测量系统的不稳定性及涨落对谱的影响程度大大降低. (4) 计算简单, 不需要预先假设待测脉冲形状, 也不需要复杂的数据拟合过程或几十万次的迭代计算. (5) 光子能量范围宽, 本方法可以用于从几十电子伏特至千电子伏

特量级甚至更高能量的软 X 射线的测量. (6) 脉冲时间范围宽, 用本方法可以测量从几阿秒至半激光振荡周期的阿秒脉冲, 从几飞秒至几百飞秒宽度的飞秒脉冲. (7) 所获得脉冲信息量大, 不仅能得到所测量脉冲的具体形状和宽带阿秒脉冲的频率分布, 还可以得到脉冲的不对称性和侧峰等细微的结构信息, 这对于评估、改进和应用阿秒-飞秒 X 射线光源具有非常重要的现实意义. (8) 测量精度高, 脉冲重建结果的理论偏差很小, 使变换方程方法能用来分析由于实验过程中激光和阿秒脉冲的时间抖动、激光强度和 CEP 涨落、漂移及测量系统的不稳定性等因素造成的对实验结果的影响, 这对于推动超快速测量技术的进步和阿秒-飞秒物理的研究同样具有重要的现实意义.

致谢 衷心感谢与 Bandrauk A D 教授(Université de Sherbrooke), Burnett K 教授(Oxford University), Lewenstein M 教授(the Institut de Ciencias Fotoniques)和 Crotty I M 教授(CERN, European Organization for Nuclear Research)的讨论. 感谢何海萍的支持和帮助. 感谢与北京大学叶治林教授、江栋兴教授、刘洪涛教授的讨论. 感谢陈大亚老师和叶向林老师对本工作的关心.

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[[doi](#)]
- 2 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder. *Nature*, 2004, 427: 817–820[[doi](#)]
- 3 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 2002, 419: 803–807[[doi](#)]
- 4 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann Ch, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509–513[[doi](#)]
- 5 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[[doi](#)]
- 6 Scrinzi A, Geissler M, Brabec T. Attosecond cross correlation technique. *Phys Rev Lett*, 2001, 86: 412–415[[doi](#)]
- 7 Itatani J, Quere F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera. *Phys Rev Lett*, 2002, 88: 173903[[doi](#)]
- 8 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[[doi](#)]
- 9 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[[doi](#)]
- 10 Quéré F, Itatani J, Corkum P B. Attosecond spectral shearing interferometry. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 073902[[doi](#)]
- 11 Mairesse Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys Rev A*, 2005, 71: 011401(R)[[doi](#)]
- 12 Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 2006, 314: 443–446[[doi](#)]
- 13 Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617[[doi](#)]
- 14 Ge Y C. Transfer functions for direct temporal structure measurement of femtosecond soft X-ray. *Chin Phys Lett*, 2005, 22(2): 349–352[[doi](#)]
- 15 Ge Y C. Phase determination method to directly measure intensity and frequency of temporal profiles of attosecond EUV pulses. *Chin Phys Lett*, 2005, 22(8): 1916–1919[[doi](#)]
- 16 Ge Y C. Laser phase determination and transfer function to directly measure temporal structure of a narrow bandwidth attosecond EUV pulses. *Chin Phys Lett*, 2006, 23(1): 143–146[[doi](#)]
- 17 Ge Y C. Laser-duration dependence of distribution pulse localization of emission properties of high-order harmonics generation. *Chin Phys Lett*, 2008, 25(4): 1305–1308[[doi](#)]
- 18 Ge Y C. Carrier-envelope-phase dependence of emission properties of high-order harmonic generation. *Chin Phys Lett*, 2008, 25(6): 2070–2073[[doi](#)]
- 19 Ge Y C. Quantum enhancement in laser-assisted photoionization and a method for the measurement of an attosecond XUV pulse. *Phys Rev A*, 2008, 77(3): 033851[[doi](#)]
- 20 Ge Y C. Use of a laser as a femtosecond ruler to directly measure an X-ray pulse. *Phys Rev A*, 2006, 74(2): 015803[[doi](#)]