



双色阿秒钟的原理和应用

韩猛¹, 刘运全^{1,2,3*}

1. 北京大学物理学院, 人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871;

2. 量子物质协同创新中心, 北京 100871;

3. 山西大学极端光学协同创新中心, 太原 030006

* 联系人, E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

2020-05-01 收稿, 2020-05-18 修回, 2020-05-19 接受, 2020-05-20 网络版发表

国家自然科学基金(11434002, 11774013)资助

摘要 阿秒钟基于单色圆偏振光场中的角度-时间对应原理, 是强场物理中具有阿秒时间分辨本领的重要工具. 近年来, 双色飞秒光场由于具有灵活的可操作性和丰富的多样性, 逐渐发展为调控电子超快动力学的重要手段之一. 将阿秒钟和双色光场相结合的双色阿秒钟得到了越来越广泛的关注, 成为强场物理研究的前沿方向之一. 本文将介绍两种双色阿秒钟方案. 首先, 基于同向旋转的双色圆偏振光场, 提出并演示了一种全新的时间分辨的光电子干涉术, 即双指针阿秒钟. 利用该方案, 提取了电离电子波包的相位信息和振幅信息, 揭示了电子在势垒下的隧穿动力学. 其次, 提出并演示了一种改进型阿秒钟, 在一束圆偏振飞秒激光光场中加入另一束线偏振的倍频光来校准阿秒钟, 使得测量隧穿时间所对应的光电子偏移角更加准确可靠. 另外, 我们在理论上证明了瞬时隧穿和Wigner延时隧穿这两种看似对立的隧穿图像可以被统一在同一个理论框架下(即强场近似理论)进行描述. 对于改进型阿秒钟, 这两种隧穿图像的理论结果都与实验结果相符合.

关键词 强场电离, 阿秒钟, 双色光场, 隧穿时间

量子力学的诞生与发展离不开光和物质相互作用的研究, 激光的问世^[1]为这一研究领域注入了新的活力. 随着超短激光脉冲峰值功率的不断增加^[2], 激光的电场强度可以达到甚至超过原子内部的库仑场(氢原子的基态电子所感受到的库仑场的等效光强为 $3.51 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$), 各种新奇的物理现象层出不穷^[3~6], 如多光子电离^[7~9]、隧道电离^[10~12]、分子解离^[13~15]、高次谐波^[16,17]等. 另一方面, 强场物理的发展推动了超快激光技术的进步, 打开了阿秒(attosecond, $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$)世界的大门^[18,19], 建立了阿秒科学. 该学科的目标是在阿秒时间尺度内揭示、调控原子分子内部的电子动力学, 进而实现前所未有的功能来服务人类. 如今, 人们通过中红外光场驱动高次谐波, 产生的孤立阿秒

脉冲达到了43 as的脉宽^[20], 已经小于氢原子基态电子的运动周期(151 as). 不论是强场物理还是阿秒科学, 强激光与原子的电离相互作用都是其最基础、最重要的物理基石.

20世纪60年代, 苏联科学家Keldysh^[10]意识到, 当光场的频率远小于电子的运动频率时, 可以把光场看作一个静电场, 该静电场会把原子内部的库仑场压弯, 形成一个有限厚度的势垒, 基态电子可以通过量子隧穿机制摆脱这个势垒的约束, 实现电离. 这一观点极具开创性, 第一次提出了光致电离的时域图像机制, 即隧道电离. 由于隧穿的非经典特性, 电子在势垒下的动力学就成了研究的热点. 关于电子势垒下动力学, 有两个问题一直充满着争议, 并引发了人们的极大关注, 即电

引用格式: 韩猛, 刘运全. 双色阿秒钟的原理和应用. 科学通报, 2021, 66: 902~912

Han M, Liu Y Q. Principle and application of two-color attoclock (in Chinese). Chin Sci Bull, 2021, 66: 902~912, doi: [10.1360/TB-2020-0519](https://doi.org/10.1360/TB-2020-0519)

子波包的势垒下相位和隧穿时间的问题。其中隧穿时间并不是一个新的问题，最早可以追溯到量子力学建立初期^[21]。由于在量子力学中，时间不是一个力学量，没有对应的本征值，因此关于隧穿时间的测量一直存在争议，它在不同历史时期^[22]、不同领域^[23]都被激烈地探讨过。在强场物理领域中，随着隧道电离机制的发现以及激光技术的进步，隧穿时间这一有趣的争论有望在强场隧道电离的范畴内被解决。基于圆偏振或椭圆偏振激光的阿秒钟方案于2008年左右被正式提出^[24-26]。

在圆偏光场中，不同时刻电离的电子波包在光场中获得的动量方向不一致，因而可以利用光电子的发射方向实现阿秒精度的时间分辨。以常用的800 nm圆偏光为例，光电子发射角变化1°对应于8 as的时间分辨率，这就是阿秒钟的“角度-时间”对应原理^[24-26]。在圆偏光场中，光电子动量谱中只存在域上电离(above-threshold ionization, ATI)的电子结构(即周期干涉)，其他电子干涉结构都会被抑制掉。发生周期干涉的电子波包在势垒下所感受到的光场相同，它们携带的势垒下相位也将是相同的，因此无法从它们的干涉图案中提取势垒下的相位信息，而势垒下相位携带着丰富的电子隧穿动力学信息^[27-29]。另外，利用阿秒钟测量隧穿时间离不开阿秒钟的校准，而阿秒钟的校准依赖于少周期激光载波包络相位(carrier-envelope phase, CEP)或者椭圆率的测量和控制^[30-32]。在通常的强场实验中，CEP的抖动和椭圆率的不确定性会给阿秒钟的测量带来严重的误差。针对以上两个固有弊端，我们利用双色光场改进了原有的阿秒钟方案，提出所谓的双色阿秒钟^[33-35]，极大地拓展了阿秒钟的本领和应用范围。

1 双指针阿秒钟表征电子波包

在一束强的400 nm圆偏光场中，加入另一束同向旋转的强度微扰的800 nm圆偏光，共同电离原子(我们实验选择的是氩原子)。其中，400 nm光场的偏振矢量旋转得快，且强度大(光强 $\sim 1.1 \times 10^{14}$ W/cm²)，因此可以看作“分针”。800 nm光场的偏振矢量旋转得慢，且光强为400 nm光强的1/100左右，因此可以看作“时针”。两束光的偏振矢量同向旋转，类似于同一个钟表的两个指针，因此取名为“双指针阿秒钟”^[33]。值得注意的是，基频光的功率要控制在微扰的水平，使其无法单独电离原子，这是为了保证双色场中“角度-时间”的对应关系可以近似为单色光场中的形式。

1.1 双指针阿秒钟的原理

如图1(a)所示，对于相距一个400 nm周期的任意两个电离时刻(t_0 和 t_0+T_{400})而言，电子所感受到的800 nm光场的大小相同，但是方向相反，因此800 nm微扰光场会使这两个时刻形成的原子势垒朝着相反的方向调制，电离出的电子波包的势垒下相位不再相同。为了方便描述，我们引入一个复数 ϵ 代表波包受微扰光的调制信息。将 t_0 时刻电离的波包记为 $\psi=\psi_0 e^{-i\epsilon}$ ， t_0+T_{400} 时刻电离的波包则可以表示为 $\psi=\psi_0 e^{i\epsilon}$ ，因此 ϵ 中携带着电子在势垒下的动力学信息，其实部($\text{Re}[\epsilon]$)代表相位的调制信息，虚部($\text{Im}[\epsilon]$)代表振幅的调制信息。图1(b), (c)展示了在双色场相对相位为零时，强场近似(strong-field approximation, SFA)模型^[36]的计算结果。可以看出，在单色光场中，光电子动量谱中只存在一系列多光子阈上电离吸收峰的圆环，即ATI结构。在双色光场动量谱中，相邻两阶ATI之间出现了边带结构(sideband, SB)，此时ATI电子峰的圆环不再是各向产量均匀的，ATI的峰值朝向与SB的峰值朝向相反。值得注意的是，在双指针阿秒钟中，角度分辨的光子动量谱恰好对应为时间分辨的干涉图。例如，图1(a)中两个电子波包的干涉条纹将映射在末态动量谱的90°方向。将干涉图的横坐标由动量转化为能量，在此能谱上，ATI和SB为一组等间隔的峰，类似于光学干涉图样中的等间距条纹，因此可以借助光学中提取相位的方法来处理这里的干涉图。

将双指针阿秒钟与空间杨氏双缝实验进行比较，见图2。在空间杨氏双缝实验中，如果对缝宽进行调制，使得其中一个缝的宽度略微小一些，另一个缝的宽度略微大一些，则会发现干涉条纹的对比度和位置发生变化，从干涉图案的变化能够提取出缝宽调制对光波的影响。类似地，在双指针阿秒钟中，利用微扰的基频光来调制原子势垒。值得一提的是，这里的调制是二维的，包括势垒的厚度和取向。因此，这两个时刻发射的电子波包不再相同，类似地，可以从干涉图案的变换中提取电子波包的相位信息和振幅信息。

1.2 电子波包相位的提取

采取傅里叶变换的方法从光电子干涉图像提取相位信息，傅里叶变换法在光学干涉术中得到了广泛应用^[37]。普通的光学干涉图样一般表现为一系列在实空间的等间隔条纹，在数学上可以记作 $I(x,y)=a(x,y)+b(x,y)\cos[2\pi f_0 x+\phi(x,y)]$ ，其中 $a(x,y)$ 是背景项， $b(x,y)$

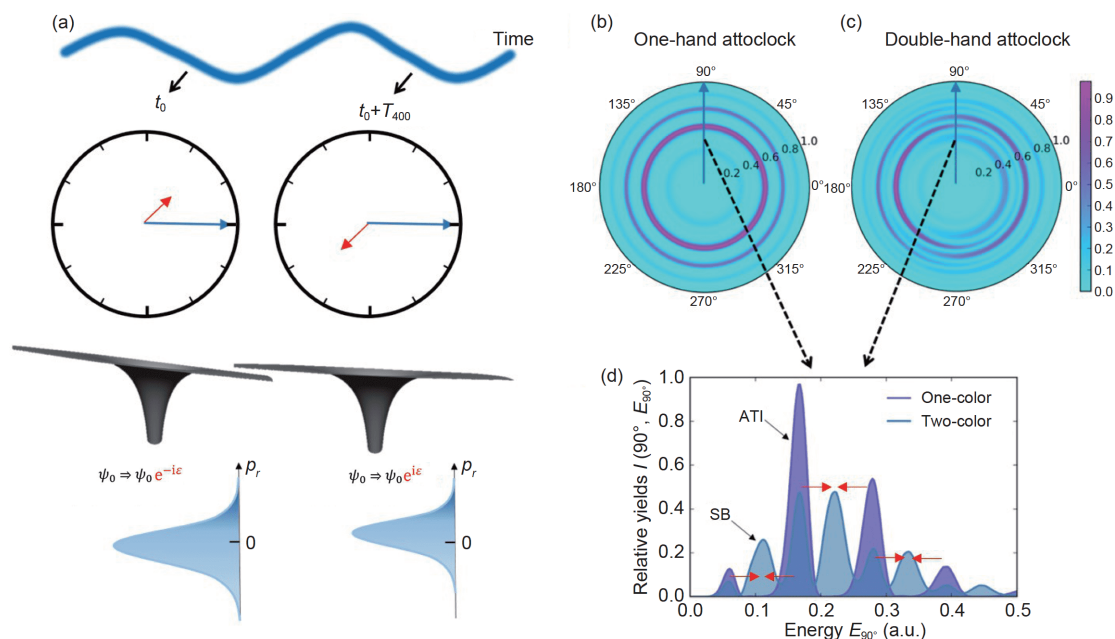


图 1 双指针阿秒钟的原理示意图. (a) 势垒下信息的记录过程. 基于强场近似理论计算的单色光场(b)和双色光场(c)中的光电子动量分布. (d) 强场近似理论预测的沿90°发射角的光电子能谱. 该能谱也可以看作(a)中的两个示例波包的干涉条纹

Figure 1 Principle schematics of double-hand attoclock. (a) The record process of sub-barrier information. The simulated photoelectron momentum distributions from strong-field approximation theory in one-color field (b) and two-color field (c), respectively. (d) The photoelectron energy spectrum along the emitting angle of 90° predicted by the strong-field approximation. This energy spectrum can be also viewed as the interference fringe between the two wavepackets demonstrated in (a)

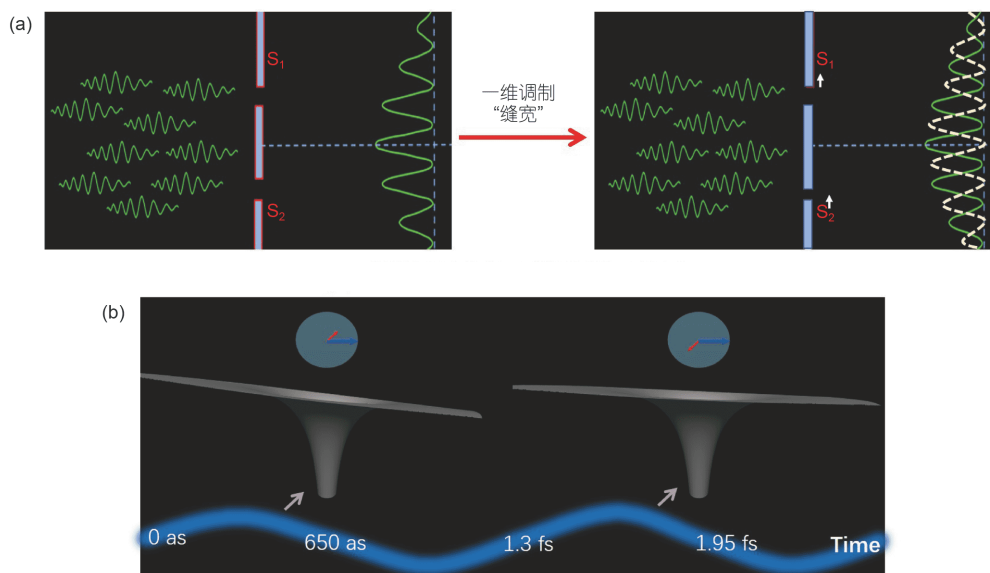


图 2 双指针阿秒钟类比于空间杨氏双缝实验. (a) 空间杨氏双缝实验及其微扰测量方案; (b) 双指针阿秒钟及其微扰测量方案

Figure 2 The analogy of double-hand attoclock with spatial Young's double-slit experiment. (a) The spatial Young's double-slit experiment and the perturbative measurement; (b) the double-hand attoclock and the perturbative measurement

是干涉项幅值, $\phi(x, y)$ 是发生干涉的两束光的相位差, 这个相位差是人们所感兴趣的. 将该干涉图沿条纹变化方向(即 x 方向)做一维傅里叶变换, 可以得到复数分

布 $G(f, y) = A(f, y) + C(f - f_0, y) + C^*(f + f_0, y)$, 其中 $C(f, y) = \mathcal{F}\left[\frac{1}{2}b(x, y)\exp(i\phi(x, y))\right]$ 是干涉项幅值和相位因

子乘积的傅里叶变换, $\mathcal{F}$ 为傅里叶变换符号. 在傅里叶频谱中, 将正、负频项(即 $C(f-f_0, y)$ 和 $C^*(f+f_0, y)$)中的任意一项平移到频谱中心, 即可以得到 $G(f, y)$, 再对其做傅里叶逆变换, 取结果的辐角分布, 便可以得到相位差 $\phi(x, y)$.

对于双指针阿秒钟而言, 考虑基频光的两个周期(即4个电子波包)就可以完整地包括双色光场的周期性. 将单色400 nm光场中电子干涉图记作 $I_{\text{one}} = |\psi_0 + \psi_0 e^{ib} + \psi_0 e^{i2b} + \psi_0 e^{i3b}|^2$, 双色光场中的电子干涉图 $I_{\text{two}} = |\psi_0 e^{-i\epsilon} + \psi_0 e^{i\epsilon+ib} + \psi_0 e^{-i\epsilon+i2b} + \psi_0 e^{i\epsilon+i3b}|^2$, 其中 $b = -\int_{t_0}^{t_0+T_{400}} [p + A(t)]^2 / 2 + I_p dt = -(p^2 / 2 + U_p + I_p) T_{400}$ 为两个波包由于传播时间不同带来的相位差, 设 $\psi_0 = W_0 e^{i\phi_0}$ 为单色场中的电离波包. 通过简单的数学运算, 电子干涉图(在角度 θ 和能量 E_θ 构成的平面内)可以表示为

$$I^{(\text{one})}(\theta, E_\theta) = 4W_0^2 + 6W_0^2 \cos(E_\theta T_{400} + a) + 4W_0^2 \cos(2E_\theta T_{400} + 2a) + 2W_0^2 \cos(3E_\theta T_{400} + 3a), \quad (1)$$

$$I^{(\text{two})}(\theta, E_\theta) = 2W_0^2 (e^{-2\text{Im}[\epsilon]} + e^{2\text{Im}[\epsilon]}) + 4W_0^2 \cos(E_\theta T_{400} + 2\text{Re}[\epsilon] + a) + 2W_0^2 \cos(E_\theta T_{400} - 2\text{Re}[\epsilon] + a) + 2W_0^2 (e^{-2\text{Im}[\epsilon]} + e^{2\text{Im}[\epsilon]}) \cos(2E_\theta T_{400} + 2a) + 2W_0^2 \cos(3E_\theta T_{400} + 2\text{Re}[\epsilon] + 3a), \quad (2)$$

其中 $a = (U_p + I_p) T_{400}$ 为常相位. 可以看出, 干涉图是由多个余弦函数叠加而成, 经过傅里叶变换, 振荡频率不同的余弦项将会在频谱中分开. 从式(2)可知, 虚相位(即 $\text{Im}[\epsilon]$)包含在背景项中, 对应于傅里叶变换后的零频项; 实相位(即 $\text{Re}[\epsilon]$)包含在傅里叶变换中的基频项和三倍频项中, 为了简单起见, 从三倍频项中提取电子波包的实相位.

图3(a), (b)给出了实验测量结果. 首先, 将实验上直接测量到的动量谱转化为角度分辨的能谱 I_{one} 和 I_{two} . 其次, 沿能量方向做傅里叶变换, 得到二维的傅里叶谱. 在提取虚相位时, 单独保留傅里叶谱的零频项, 并将其其他高阶项略去, 然后做傅里叶逆变换, 就可以单独得到背景项 $4W_0^2$ 和 $2W_0^2 (e^{-2\text{Im}[\epsilon]} + e^{2\text{Im}[\epsilon]})$, 利用二者的比值, 可以消去 W_0 , 求解出虚相位. 提取实相位时, 在双色的傅里叶谱上单独保留三倍频项, 再将三倍频项移到零频项后做傅里叶逆变换, 得到的复数分布为

$W_0^2 e^{i(2\text{Re}[\epsilon] + 3a)}$, 取这个分布的辐角分布, 减去常数因子 $3a$ 后即可得到实相位分布. 通过上述的提取算法, 我们得到了实相位和虚相位, 如图3(c), (d)所示, 每个发射角对应的电离时刻已经利用强场近似模型校准完毕, 并标在图上.

1.3 模型的验证与结果讨论

为了验证干涉模型的可靠性以及提取的相位分布是否正确, 将提取到的相位分布 $\text{Re}[\epsilon]$ 和 $\text{Im}[\epsilon]$ 和 W_0 带入到双色场的干涉公式(即式(2)), 可以重构出角度分辨的光电子能谱, 如图3(f)所示. 通过对比测量结果(即图3(e))和我们的重构结果, 可以发现二者基本一致, 这就证实了干涉模型的可靠性和提取相位的正确性.

下面讨论提取到的相位分布的物理含义. 从图3(d)展示的虚相位分布来看, 当双指针平行时, 沿该发射方向的虚相位最大, 对应的物情景是电子波包的峰值达到最大值; 当双指针的夹角逐渐增大时, 可以看到, 电子波包的中心峰值逐渐降低, 两翼的分布逐渐增加. 从提取的实相位分布来看, 当双指针平行时, 实相位取得极小值; 当双指针垂直时, 实相位取得极大值. 这是因为在双指针平行时, 虽然电子波包的振幅变化明显, 但是波包的中心动量基本不变, 所以两个波包的相位差趋于零; 当双指针垂直时, 电子在势垒下感受到的800 nm光场表现为横向的作用力, 于是电离波包的中心动量会发生偏移, 所以两个波包的相位差趋于极大值.

2 改进型阿秒钟统一隧穿时间图像

基于单色阿秒钟方案实验, 人们一直致力于解决隧穿时间这一“古老”的问题. 利用阿秒钟方案得到的光电子动量谱在360°发射角内只存在一个产率极值, 人们发现这个最概然光电子对应的发射角不是激光场峰值时刻(t_{max})的负失势方向, 即 $p_f \neq -A(t_{\text{max}})$, 存在着一个偏移角(offset angle). 如何解释这个偏移角呢? 这个偏移角与隧穿时间又是什么关系呢? 强场领域关于隧穿时间的争议来源于如何解释最概然电子的偏移角^[29].

根本地, 光电子的末态动量由三部分组成, 即

$$p_f = -A(t_0) + p_i + p_{\text{cc}}, \quad (3)$$

其中 p_i 为电子隧穿后的初动量, p_{cc} 为经典传播导致的库仑偏移. 光电子的末态出射角也受这三部分影响,

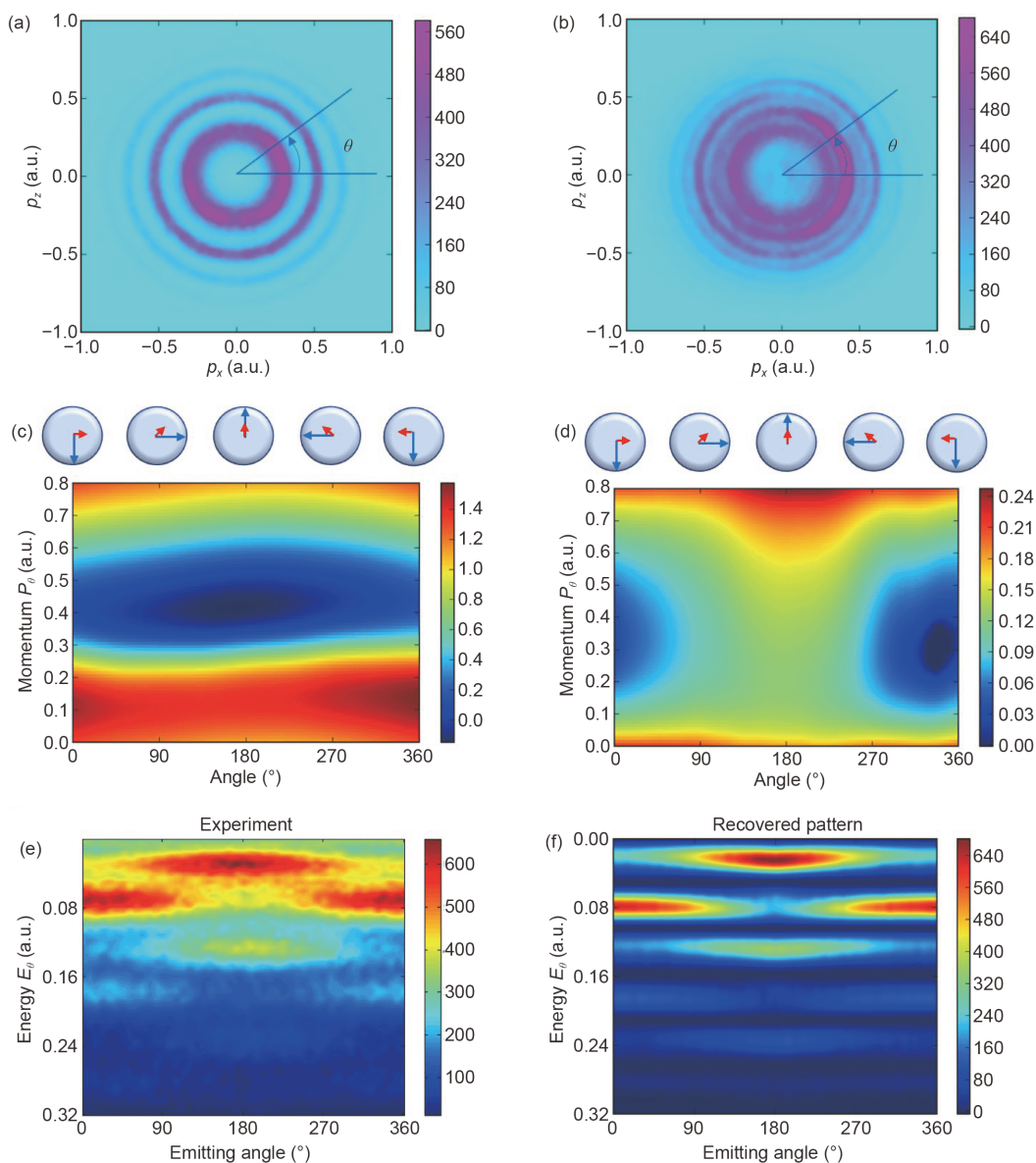


图3 基于实验数据的相位提取和验证。单色场(a)和双色场(b)中的光电子动量谱; 实验提取的实相位(c)和虚相位(d); (e) 角度分辨的光电子能谱; (f) 利用提取的实相位和虚相位重构的光电子能谱

Figure 3 Phase extraction and verification based on experimental data. The photoelectron momentum distributions in one-color field (a) and in two-color field (b), respectively. The extracted real phase (c) and imaginary phase (d), respectively. (e) The measured photoelectron angle-resolved energy spectrum. (f) The reconstructed angle-resolved energy spectrum based on the extracted real phase and imaginary phase

因此, 不仅电子真实的电离时刻 t_0 会对发射角有影响(即阿秒钟的原理), 电子的初动量和库仑偏移同样会影响到末态发射角。经过人们的不断研究和争辩, 对最概然电子的偏移角主要有两种学术观点, 即瞬时隧穿^[25,26,30~32,38~40]和延时隧穿^[41~45]。

对于瞬时隧穿图像, 它来自强场近似理论中鞍点法的应用, 后来被以三步模型为代表的一系列经典和半经典电子轨迹模型所使用^[32~35]。瞬时隧穿图像认为,

电子的偏移角由库仑偏转导致, 考虑了非绝热隧穿效应, 在线偏振光场中电子波包的初始纵向动量不再为零, 中心动量通常小于0.2 a.u.^[38]。但是, 在圆偏振光场中, 最概然电子对应的初始纵向动量仍然为零, 所以初始纵向动量贡献不明显。这种瞬时隧穿图像也经过了解析的R-Matrix理论的检验^[30]。最近, 澳大利亚的一个研究团队首次做了氢原子的阿秒钟实验, 也支持这种观点^[31]。

对于延时隧穿图像,其中以Wigner隧穿时间最为引人关注,它是指电子波包相位对能量的一阶导数^[45].如果使用光学术语,它可以被理解为光脉冲的群速度延迟.在这种Wigner图像中,如果跟踪电子波包峰值位置的含时变化,就会发现波包的峰值需要一定时间才能到达设定的隧穿出口位置(在短程势中为 $x_{\text{exit}}=I_p/F$),通常这个隧穿时间在百阿秒量级.与之对应地,电子波包的隧穿出口将会获得一个较大的纵向动量和较宽的分布宽度,因此这种观点主要认为隧穿时间和初始纵向动量对光电子最概然偏移角的贡献不可忽略^[43,45].数值求解含时薛定谔方程(time-dependent Schrödinger equation, TDSE)并结合虚拟探测器的方法(可以实时跟踪电子波包峰值),就得到这种延时隧穿的结论^[43].另外,基于TDSE的波函数可以得到Wigner函数分布,根据Wigner函数分布也可以得到类似的延时隧穿的结论.值得一提的是,2017年,德国海德堡马普核物理研究所的一个研究小组用氩/氪混合气体做了长波段椭圆偏光的阿秒钟实验,他们采用Wigner延时隧穿理论解释了实验观测到的两种气体的相对延时,进而声明发现了Wigner延时隧穿的存在^[45].

综上所述,瞬时隧穿图像和延时隧穿图像似乎水火不相容,一时间充满争议,难辨是非.

2.1 Wigner延时隧穿与瞬时隧穿的理论统一

强场近似理论本身不依赖于任何隧穿图像,自然也就没有隧穿时间的概念.瞬时隧穿图像来源于在强场理论框架下使用的鞍点近似方法^[46,47],于是一个很自然的问题就是,是否可以从强场近似理论出发,得到Wigner延时隧穿呢?如果可以的话,我们就可以在同一个理论框架下统一这两种对立的学术观点.

基于强场近似理论, t 时刻总的电离电子波包可以表示为

$$\begin{aligned}\psi(v, t) &= -i \int_0^t e^{-iS_v(t, t')} dt' S_v(t, t') \\ &= 1/2 \int_{t'}^t [v_1 - A(t) + A(t'')]^2 dt'' \\ &\quad + v_p^2 / 2(t - t') - I_p t',\end{aligned}\quad (4)$$

其中, t' 为电离时刻, v_1 和 v_p 分别是电子速度 v 的纵向分量和横向分量.Wigner函数是描述波函数在位置-动量平面(或者时间-能量平面)内的准概率分布,根据定义,Wigner函数表示为^[48]

$$W(v, r; t) = \pi^{-1} \int dv_1 \psi(v + v_1, t) e^{-2iv_1} \psi(v - v_1, t). \quad (5)$$

基于SFA理论给出的波函数,可以计算出相对应的Wigner函数分布,将式(4)代入式(5)后,取观察时刻 t 为一个较大值,即可算出如图4(a), (b)所示的Wigner函数分布.

为了统一两种观点,我们在计算中采用与文献^[45]中图2相同的参数条件,分别计算了高光强($7.9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)和低光强($1.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)两种条件下的Wigner函数分布.可以看到,有一部分电子波包从中心位置(即基态)电离出去.图4中抛物线状曲线为电子的时域干涉结构^[48],在Wigner函数分布中追踪电子波包峰值的轨迹,称为Wigner轨迹,可以代表波包的群速度信息.如果认为隧穿出口位置为 I_p/F ,就可以得到电子波包从原点运动到隧穿出口所需要的时间,即Wigner隧穿时间.隧穿出口的Wigner函数分布曲线则代表了初始纵向动量的分布^[49].计算结果表明,在这两个光强下,Wigner隧穿时间分别是72和138 as,与文献^[45]中的结果一致.另外,我们在图4中添加了瞬时隧穿图像中的Simple-man轨迹(不包括库仑势),可以发现无穷远处,Wigner轨迹和Simple-man轨迹相重合.

综上所述,理论上,基于强场近似理论可以自然地过渡瞬时隧穿图像和Wigner延时隧穿图像.

2.2 精确校准的改进型阿秒钟

隧穿时间的争论来自于对最概然偏移角的解释,要想解决这一争议,首先必须对最概然偏移角进行精准测量.要想得到最概然偏移角,必须事先知道光场在峰值时刻的偏振方向,即“校准”阿秒钟.如果使用少周期光脉冲,校准阿秒钟就等效于测量光场的载波包络相位(carrier envelope phase, CEP),然而我们知道,少周期光脉冲CEP的稳定是一个挑战,而强场电离实验需要长时间的稳定性,这就会给实验带来不小的误差.另一方面,如果使用椭圆偏光做阿秒钟实验,校准阿秒钟就等效于确定光场的长轴和椭圆率,然而由于强场电离实验中需要对激光束进行聚焦,无法对二者做出十分准确的测量.因此,普通的阿秒钟无法得到精确的校准.

我们在实验上提取了一种精确校准的改进型阿秒钟.如图5所示,利用一束微扰的竖直偏振的倍频光来校准800 nm圆偏振光构成的阿秒钟,两束光的强度分别为 $I_{400}=0.56 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_{800}=1.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$,光场可以表示为 $F(t)=[F_{800}\cos(\omega t)+F_{400}\cos(2\omega t+\delta\phi)]z+F_{800}\sin(\omega t)x$.其中,两束光的相对相位 $\delta\phi$ 由楔形镜控制,精

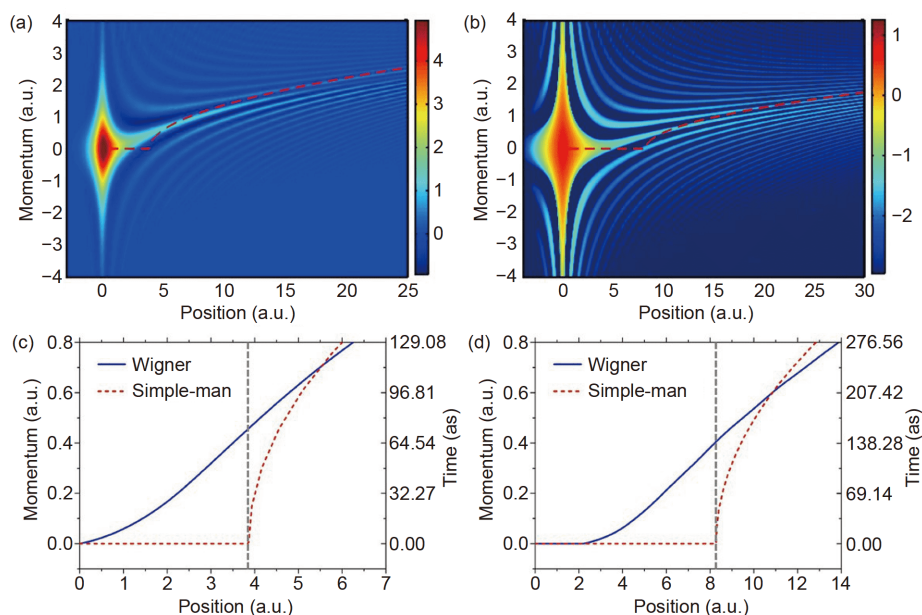


图4 Wigner函数分布以及对应的隧穿时间和出口纵向动量. 高光强($7.9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)(a)和低光强($1.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)(b)时的Wigner函数分布. (c), (d) 从(a)和(b)中提取的Wigner轨迹, 并与瞬时隧穿的Simple-man轨迹相比较

Figure 4 Wigner function distributions and the corresponding tunneling time and initial longitudinal momentum at exit. (a), (b) The Wigner function distributions at the intensities of 7.9×10^{14} and $1.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, respectively. (c), (d) The Wigner trajectories extracted from (a) and (b), respectively, and the comparison with the Simple-man trajectories within the instantaneous tunneling picture

度可以达到阿秒量级^[33~35]. 在以下讨论中, 我们聚焦于相对相位为零的情况. 如图5(a)所示, 未加入微扰的线偏光时, 精细调节光场的椭圆率, 光电子角分布呈现为完美的圆环时, 即表明电离光为理想的圆偏. 当加入线偏振光后, 发现各向同性被打破, 光电子角分布呈现一大两小的三个瓣, 分别对应合成光场在一个周期内的三个峰值, 其中最概然的光电子对应于 $t=0$ 时刻, 即两束光同向平行时. 利用微扰光的偏振方向(即 z 方向)将光场在峰值时刻的偏振方向标记出来, 从而精准地校准了阿秒钟^[35].

2.3 改进型阿秒钟对两种隧穿图像的实验统一

利用测量到的精确的实验结果, 我们首先来验证瞬时隧穿图像是否正确. 图6展示了三种理论方法计算的光电子角分布, 包括数值求解SFA电离矩阵元^[36]、数值求解TDSE^[50~52]和库仑修正的强场近似(Coulomb-corrected strong-field approximation, CCSFA)模型^[53~56]. 数值SFA方法独立于基于隧穿图像的理论处理, 其结果显示最概然光电子沿 $-A(t=0)$ 方向出射, 偏移角为零. TDSE和CCSFA方法则包含了库仑势的贡献. TDSE方法与数值SFA方法一样, 不依赖于隧穿的概念; CCSFA方法是基于鞍点近似的方法(即瞬时隧穿)对电子轨迹

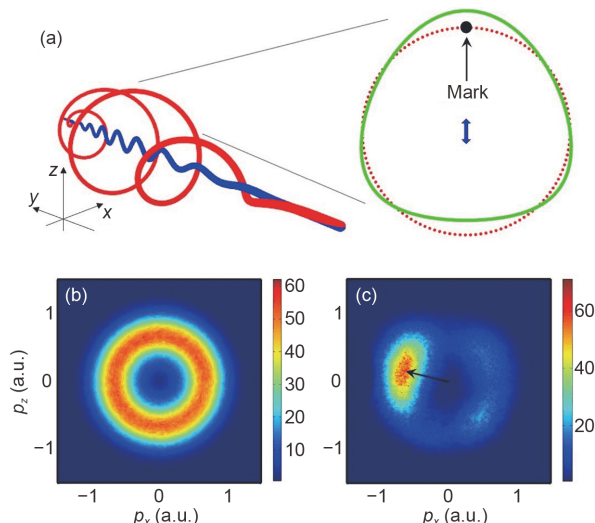


图5 改进型阿秒钟的示意图. (a) 光场的示意图; (b) 没有添加线偏光时的光电子角分布; (c) 添加线偏光后的光电子角分布

Figure 5 Schematics of the improved attoclock. (a) The diagram of light fields; (b) the photoelectron angular distribution without adding the linearly polarized light field; (c) the photoelectron angular distribution after adding the linearly polarized light field

进行库仑修正. 可以发现, CCSFA计算的电子偏移角与TDSE的相同, 都与实验结果相一致, 因此瞬时隧穿图像是可以被实验接受的.

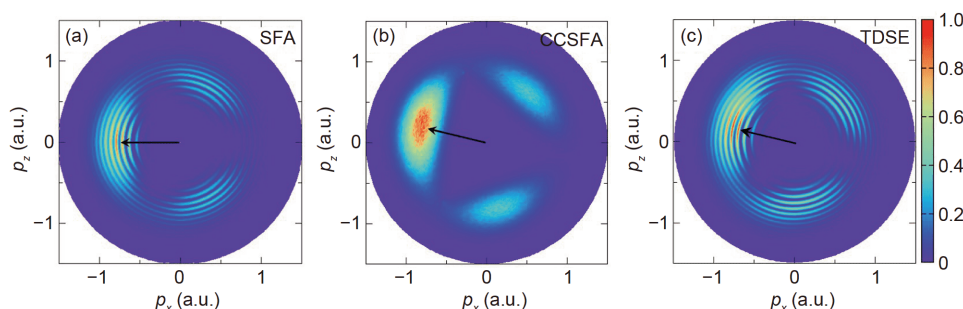


图6 瞬时隧穿理论的验证. (a) 强场近似理论的计算结果; (b) 库仑修正的强场近似的计算结果; (c) 数值求解含时薛定谔方程的计算结果
Figure 6 Verification of the instantaneous tunneling picture. (a) The calculated result of the SFA theory; (b) the calculated result of the CCSFA; (c) the calculated result of numerically solving the TDSE

基于SFA的Wigner延时隧穿理论, 在我们的实验条件下, 计算了Wigner隧穿时间和初始纵向动量分布, 如图7(b)所示. 电子波包的初始纵向动量分布的中心在0.435 a.u., 隧穿时间为200 as左右. 为了对比, 图7(a)展示了CCSFA模型的初始纵向动量分布. 可以看出, 最概然电子波包诞生激光峰值时刻, 纵向动量为零, 这与文献[57~59]报道的结果一致.

接下来, 检验Wigner延时隧穿理论是否能够重复出改进型阿秒钟的实验结果, 这个问题是判断延时隧穿图像是否正确的试金石. 根据Wigner函数分布中计算得到的隧穿时间与初始动量分布, 采用经典轨道蒙特卡罗(classical trajectory Monte Carlo, CTMC)方法^[32,38], 让电子在激光场和库仑场中做经典运动, 求解牛顿方程. 当激光场结束后, 统计光电子的末态动量即可. 为了方便看出库仑势的作用, 可以在经典运动方程中关闭库仑势. 图8展示了基于Wigner初始条件(隧穿时间和出口动量)的光电子末态动量的角分布. 当关闭库仑势时, 最概然电子偏移角消失了, 与直接数值求解

SFA电离矩阵元的结果一致, 证明了理论的自洽性. 当包含库仑势时, 发现得到的偏移角与实验相符合, 与CCSFA和TDSE的结果也一致. 因此, 基于同一种理论, 的两种隧穿图像都可以解释改进型阿秒钟的实验结果.

3 总结与展望

本文详细介绍了新型双色阿秒钟的原理及若干应用. 我们将双色光场和阿秒钟技术结合在一起, 提出了所谓的双色阿秒钟方案. 与原有的单色阿秒钟相比, 双色阿秒钟具有灵活性高、适用范围广等特征, 本文以两种双色阿秒钟方案为例进行了说明.

首先, 提出了一种新颖的时间分辨的光电子干涉技术, 即双指针阿秒钟. 利用双指针阿秒钟, 从实验上提取了电子波包的相位和振幅信息, 通过重构的光电子动量谱, 验证了干涉模型和提取算法的正确性. 基于提取的电子波包的相位和振幅, 揭示了电子波包在势垒下的动力学信息.

其次, 在实验上演示了一种精确校准的改进型阿

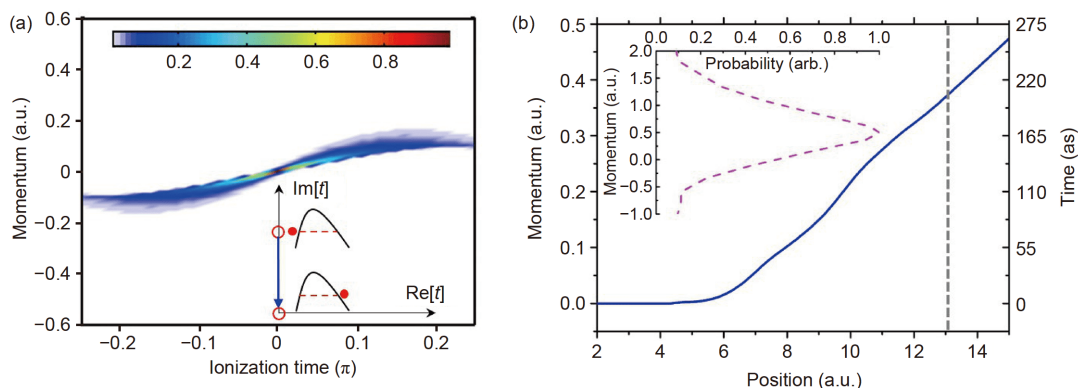


图7 鞍点图像和Wigner图像关于初始纵向动量的比较. (a) 鞍点近似图像的结果; (b) Wigner图像的结果
Figure 7 Comparison of initial longitudinal momentum distributions between saddle-point picture and Wigner picture. (a) The result of the saddle-point picture; (b) the result of the Wigner picture

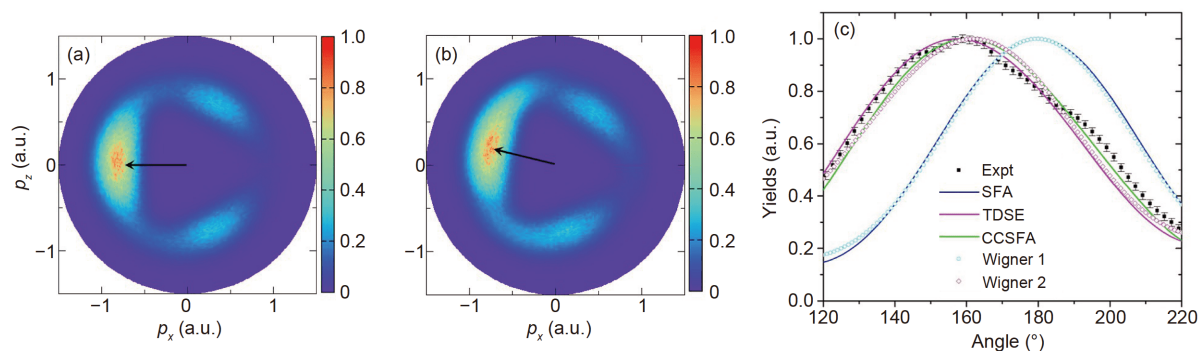


图8 检验Wigner隧穿图像. (a) 基于Wigner初始条件的CTMC模拟结果, 不包括库仑势; (b) 基于Wigner初始条件的CTMC模拟结果, 包括库仑势; (c) 能量积分后的光电子角分布. 其中Wigner 1和Wigner 2分别对应于(a)和(b)中的结果

Figure 8 Test of the Wigner tunneling picture. (a) The CTMC simulation results based on the Wigner initial conditions without (a) and with (b) the Coulomb potential in the continuum. (c) The energy-integrated photoelectron angular distributions. Wigner 1 and Wigner 2 correspond to the results in (a) and (b), respectively

秒钟, 使得测量的光电子最概然偏移角更加精准. 在强场近似理论框架下统一了Wigner延时隧穿图像和瞬时隧穿图像, 并发现两个图像都可以合理地解释我们的实验结果. 在瞬时隧穿图像中, 电子波包与激光场的相位同步, 最概然电子的初始纵向动量为零, 末态偏移角完全由势垒外运动中的库仑势导致. 在Wigner延时隧穿图像中, 电子波包的中心需要百阿秒量级的时间才

能运动到隧穿出口的位置, 在隧穿出口处电子波包具有较大的纵向动量和分布宽度, 末态偏移角是由三者(隧穿时间、初始纵向动量、库仑偏转)共同导致的. 将双色阿秒钟应用到分子电离动力学研究中是一个前沿, 双色阿秒钟不仅具有很好的时间分辨特性, 同时也具备空间分辨本领, 因此双色阿秒钟在分子轨道成像、分子隧道电离等方向具有巨大的潜力.

参考文献

- Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 1960, 187: 493–494
- Brabec T, Krausz F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Rev Mod Phys*, 2000, 72: 545–591
- Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163–234
- Ghimire S, Ndashimiye G, DiChiara A D, et al. Strong-field and attosecond physics in solids. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2014, 47: 204030–204039
- Peng L Y, Jiang W C, Geng J W, et al. Tracing and controlling electronic dynamics in atoms and molecules by attosecond pulses. *Phys Rep*, 2015, 575: 1–71
- Krausz F. The birth of attosecond physics and its coming of age. *Phys Scr*, 2016, 91: 063011
- Voronov G S, Delone G A, Delone N B, et al. Multiphoton ionization of the hydrogen molecule in the strong electric field of ruby laser emission. *JETP Lett*, 1965, 2: 337
- Perelomov A M, Popov V S, Terent'ev M. Ionization of atoms in an alternating electrical field. *Sov Phys JETP-USSR*, 1966, 23: 924
- Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys Rev Lett*, 1979, 42: 1127–1130
- Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov Phys JETP-USSR*, 1965, 20: 1307
- Faisal F H M. Multiple absorption of laser photons by atoms. *J Phys B-At Mol Phys*, 1973, 6: L89–L92
- Reiss H R. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Phys Rev A*, 1980, 22: 1786–1813
- Chelkowski S, Foisy C, Bandrauk A D. Electron-nuclear dynamics of multiphoton H_2^+ dissociative ionization in intense laser fields. *Phys Rev A*, 1998, 57: 1176–1185
- Cornaggia C, Lavancier J, Normand D, et al. Multielectron dissociative ionization of diatomic molecules in an intense femtosecond laser field. *Phys Rev A*, 1991, 44: 4499–4505
- Gong X, Song Q, Ji Q, et al. Strong-field dissociative double ionization of acetylene. *Phys Rev Lett*, 2014, 112: 243001–243005
- McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J Opt Soc Am B*, 1987, 4: 595–601
- 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
- Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 2001, 292: 1689–1692

- 19 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509–513
- 20 Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. *Opt Express*, 2017, 25: 27506–27518
- 21 MacColl L A. Note on the transmission and reflection of wave packets by potential barriers. *Phys Rev*, 1932, 40: 621–626
- 22 Hauge E H, Støvneng J A. Tunneling times: A critical review. *Rev Mod Phys*, 1989, 61: 917–936
- 23 Landauer R, Martin T. Barrier interaction time in tunneling. *Rev Mod Phys*, 1994, 66: 217–228
- 24 Zhao Z X, Chang Z, Tong X M, et al. Circularly-polarized laser-assisted photoionization spectra of argon for attosecond pulse measurements. *Opt Express*, 2005, 13: 1966–1977
- 25 Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, et al. Attosecond ionization and tunneling delay time measurements in helium. *Science*, 2008, 322: 1525–1529
- 26 Eckle P, Smolarski M, Schlup P, et al. Attosecond angular streaking. *Nat Phys*, 2008, 4: 565–570
- 27 Yan T M, Bauer D. Sub-barrier Coulomb effects on the interference pattern in tunneling-ionization photoelectron spectra. *Phys Rev A*, 2012, 86: 053403
- 28 Han M, Ge P, Shao Y, et al. Revealing the sub-barrier phase using a spatiotemporal interferometer with orthogonal two-color laser fields of comparable intensity. *Phys Rev Lett*, 2017, 119: 073201
- 29 Chen J H, Han M, Xiao X R, et al. Atomic-orbital-dependent photoelectron momentum distributions for F^- ions by orthogonal two-color laser fields. *Phys Rev A*, 2018, 98: 033403
- 30 Torlina L, Morales F, Kaushal J, et al. Interpreting attoclock measurements of tunnelling times. *Nat Phys*, 2015, 11: 503–508
- 31 Sainadh U S, Xu H, Wang X, et al. Attosecond angular streaking and tunnelling time in atomic hydrogen. *Nature*, 2019, 568: 75–77
- 32 Li M, Liu Y, Liu H, et al. Subcycle dynamics of coulomb asymmetry in strong elliptical laser fields. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 023006
- 33 Han M, Ge P, Shao Y, et al. Attoclock photoelectron interferometry with two-color corotating circular fields to probe the phase and the amplitude of emitting wave packets. *Phys Rev Lett*, 2018, 120: 073202
- 34 Ge P, Han M, Deng Y, et al. Universal description of the attoclock with two-color corotating circular fields. *Phys Rev Lett*, 2019, 122: 013201
- 35 Han M, Ge P, Fang Y, et al. Unifying tunneling pictures of strong-field ionization with an improved attoclock. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 073201
- 36 Milošević D B, Paulus G G, Bauer D, et al. Above-threshold ionization by few-cycle pulses. *J Phys B*, 2016, 39: R203–R262
- 37 Takeda M, Ina H, Kobayashi S. Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry. *J Opt Soc Am*, 1982, 72: 156–160
- 38 Sun X, Li M, Yu J, et al. Calibration of the initial longitudinal momentum spread of tunneling ionization. *Phys Rev A*, 2014, 89: 045402
- 39 Ni H, Saalmann U, Rost J M. Tunneling ionization time resolved by backpropagation. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 023002
- 40 Ni H, Saalmann U, Rost J M. Tunneling exit characteristics from classical backpropagation of an ionized electron wave packet. *Phys Rev A*, 2018, 97: 013426
- 41 Yakaboylu E, Klaiber M, Hatsagortsyan K Z. Wigner time delay for tunneling ionization via the electron propagator. *Phys Rev A*, 2014, 90: 012116
- 42 Klaiber M, Yakaboylu E, Bauke H, et al. Under-the-barrier dynamics in laser-induced relativistic tunneling. *Phys Rev Lett*, 2013, 110: 153004–153008
- 43 Teeny N, Yakaboylu E, Bauke H, et al. Ionization time and exit momentum in strong-field tunnel ionization. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 063003
- 44 Boge R, Cirelli C, Landsman A S, et al. Probing nonadiabatic effects in strong-field tunnel ionization. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 103003–103007
- 45 Camus N, Yakaboylu E, Fechner L, et al. Experimental evidence for quantum tunneling time. *Phys Rev Lett*, 2017, 119: 023201
- 46 Popov V S. Imaginary-time method in quantum mechanics and field theory. *Phys At Nuclei*, 2005, 68: 686–708
- 47 Popruzhenko S V. Keldysh theory of strong field ionization: History, applications, difficulties and perspectives. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2014, 47: 204001–204035
- 48 Czirják A, Kopold R, Becker W, et al. The Wigner function for tunneling in a uniform static electric field. *Optics Commun*, 2000, 179: 29–38
- 49 Ivanov M Y, Spanner M, Smirnova O. Anatomy of strong field ionization. *J Mod Opt*, 2005, 52: 165–184
- 50 Bauer D, Koval P. Qprop: A Schrödinger-solver for intense laser-atom interaction. *Comput Phys Commun*, 2006, 174: 396–421
- 51 Mosert V, Bauer D. Photoelectron spectra with Qprop and t-SURFF. *Comput Phys Commun*, 2016, 207: 452–463
- 52 Peng L Y, Gong Q. An accurate Fortran code for computing hydrogenic continuum wave functions at a wide range of parameters. *Comput Phys Commun*, 2010, 181: 2098–2101
- 53 Popruzhenko S V, Paulus G G, Bauer D. Coulomb-corrected quantum trajectories in strong-field ionization. *Phys Rev A*, 2008, 77: 053409
- 54 Popruzhenko S V, Bauer D. Strong field approximation for systems with Coulomb interaction. *J Mod Opt*, 2008, 55: 2573–2589
- 55 Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A, et al. Time-resolved holography with photoelectrons. *Science*, 2011, 331: 61–64
- 56 Yan T M, Popruzhenko S V, Vrakking M J J, et al. Low-energy structures in strong field ionization revealed by quantum orbits. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 253002–253005
- 57 Geng J W, Qin L, Li M, et al. Nonadiabatic tunneling ionization of atoms in elliptically polarized laser fields. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2014, 47: 204027–204032
- 58 Geng J W, Xiong W H, Xiao X R, et al. Nonadiabatic electron dynamics in orthogonal two-color laser fields with comparable intensities. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 193001–193005
- 59 Li M, Liu M M, Geng J W, et al. Experimental verification of the nonadiabatic effect in strong-field ionization with elliptical polarization. *Phys Rev A*, 2017, 95: 053425

Summary for “双色阿秒钟的原理和应用”

Principle and application of two-color attoclock

Meng Han¹ & Yunquan Liu^{1,2,3*}¹ School of Physics and State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Peking University, Beijing 100871, China;² Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871, China;³ Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China* Corresponding author, E-mail: yunquan.liu@pku.edu.cn

Time-resolving ultrafast electron dynamics driven by lights in atoms and molecules is one of the central topics in both science and technology, as a prerequisite for controlling the electron dynamics and creating unprecedented functions to serve for human. Photoionization by intense lasers is the fundamental interaction between lights and atoms. For strong-field ionization, the amplitude and the phase of the ionized electron wave packet could give direct insights of electron dynamics in the classically forbidden, sub-Coulomb-barrier region. Electron tunneling through the suppressed Coulomb potential and traveling in continuum leave fingerprints not only on the amplitude of the electron wave packet, but also on its phase distribution. Recently, benefiting from that the laser pulse duration approaches to the natural time scale of intra-atomic electron dynamics, one was allowed to image the amplitude and the phase of an electron wave function on the attosecond scale using new metrologies combined with attosecond light pulses, such as attosecond streaking camera and the technique of reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transition. Alternatively, attoclock is based on the angle-time mapping principle in one-color circularly polarized femtosecond light fields, without resorting to the attosecond light pulses. It is originally introduced as a powerful method to address the issue of tunneling time delays with the attosecond time resolution in strong-field physics. In recent years, due to the flexible manipulity and the rich diversity of the two-color femtosecond light fields, the two-color fields have gradually become an important method to control the ultrafast electron dynamics driven by intense lasers. The two-color attoclock combined with attoclock and two-color fields, then attracts the increasing attention, and hence becomes the research front of strong-field physics. In this review, we will introduce two kinds of the two-color attoclock. First, based on the co-rotating two-color light fields, we demonstrate a novel time-resolved photoelectron interferometry, i.e., double-hand attoclock. Using this technique, one can extract the phase information and the amplitude information of the ionized electron wavepackets by strong-field ionization with intense light pulses. From the extracted time-resolved distributions of electron phase and amplitude, we reveal the electron sub-barrier dynamics with attosecond time resolution. As to the second two-color attoclock, we study the old and controversial question, i.e., tunneling time delay. Introducing a linearly polarized second harmonic field to calibrate the attoclock constructed by a circularly polarized fundamental-frequency light field, we demonstrate an improved attoclock. The improved attoclock can measure the photoelectron offset angle more accurately, which corresponds to tunneling time delay. Theoretically, we also demonstrate that the instantaneous tunneling picture and the Wigner delay picture for tunneling, which seem contradictory with each other, can be unified within the same theoretical framework, i.e., strong-field approximation theory. For the result of the improved attoclock, the two tunneling pictures can both agree with the experiment. To conclude, the two-color attoclock possesses not only very high time resolution but also good space resolution. Therefore, the two-color attoclock has a very exciting potential in molecular orbital imaging, tunneling ionization of molecules and so on.

strong-field ionization, attoclock, two-color field, tunneling timedoi: [10.1360/TB-2020-0519](https://doi.org/10.1360/TB-2020-0519)