

电子动力学及相干辐射的强场调控与阿秒探测* ——强场与阿秒物理领域中的重大课题研究进展

赵增秀 袁建民[†]

(国防科学技术大学理学院物理系 长沙 410073)

2014-08-12收到

[†] email: jmyuan@nuct.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20150103

Strong-field control and ultrafast detection of electron dynamics and coherent radiation towards attosecond physics

ZHAO Zeng-Xiu YUAN Jian-Min[†]

(Department of Physics, College of Science, National University of Defense Technology, Changsha, 410073, China)

摘要 电子动力学及相干辐射的强场调控与阿秒探测是强场物理与阿秒物理领域中的重大课题。通过同步探测阿秒辐射和太赫兹辐射,文章作者首次实现了阿秒精度的太赫兹产生动力学的探测与控制,表明阿秒物理与太赫兹技术的结合有助于深入理解强场驱动下太赫兹产生机制和电子再散射动力学,展示了利用双色场控制电子波包相干相位,实现超快物理过程强场调控的可能。文章作者所提出的精确刻画太赫兹时域瞬时电场方案,有助于推动极化敏感的太赫兹谱学研究。可以预期,阿秒脉冲与太赫兹源技术不会局限于原子分子物理领域。实现阿秒物理与太赫兹技术之间的互为抽运与探测,将会极大地推动化学、材料科学、凝聚态物理等领域的高时空分辨的超快动力学探测。

关键词 阿秒, 太赫兹, 双色场, 偏振

Abstract The control and ultrafast detection of electron dynamics and coherent radiation are among the key questions that may be addressed by strong field physics and attosecond physics. By marrying the best of two worlds, i.e. attosecond science and THz technology, we have demonstrated that by synchronizing attosecond radiation with THz wave emission we may obtain a deeper understanding of the mechanism of THz generation as well as more insight into the rescattering electron dynamics following tunneling ionization. It indicates that ultrafast dynamics within strong fields can be coherently controlled through gating the propagation of electron wave packet using two-color laser pulses. In addition, we propose and verify a new scheme to measure both the amplitude and polarization of the THz field in the time domain, which could promote various applications of polarization-sensitive THz spectroscopy. The technology of blending THz sources and attosecond pulses is expected to go beyond atomic and molecular physics, with significant impact on, for example, the study of carrier dynamics in solids using pump-probe schemes, where the dynamics can only be initiated efficiently by THz sources while the probing requires high spatiotemporal resolution.

Keywords attosecond, THz wave, two-color, polarization

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB922203)资助项目

1 强场物理与阿秒物理领域中的一个重大课题

1887年，赫兹发现紫外光辐照金属所产生的光电子能量与辐照度无关，只与光子的频率和金属的逸出功有关。1905年，爱因斯坦提出光子假设，认为光子能量正比于频率。电子要么不吸收，要么吸收一个完整光子。只有当吸收一个光子后的能量大于逸出功时，电子才会逃逸并把多余的能量以动能形式释放，从而成功地解释了光电效应，并因此获得1921年的诺贝尔物理学奖。但是直到今天，我们发现故事依然没有结束。

在“前激光”时代，紫外光源强度太弱，对应的光子数密度很低。再次感谢爱因斯坦，他于1916年发现的受激辐射原理导致了激光在1960年诞生。今天，钛宝石飞秒激光器的光强可以很容易地达到 10^{18} W/cm²，对应的光子数密度为 10^{26} cm⁻³。在这么高的光子数密度下，原子可以同时吸收多个光子，发射出光电子，即所谓的多光子电离。此时关于光电效应的结论已经不准确了，这是因为多光子电离不存在所谓的频率下限。进一步人们还发现，吸收的光子数甚至可以远大于克服束缚能所需要的最低光子数，出现阈上电离现象。同时，吸收的多个光子能量可以转化为一个相应能量的大光子发射出来，导致高次谐波产生过程。这些极端非线性过程，依赖于激光的相干性和超强的激光光强，难以被微扰理论所解释，导致强场物理的出现与发展。

在光电效应中，光电子逸出几乎不需要时间(10^{-9} s)。但是今天看来，这个过程其实很慢(其中部分原因在于金属中电子之间的散射)。利用强红外激光作用于气体分子产生的高次谐波所制备的光脉冲目前已短至80 as(阿秒， $1 \text{ as} = 10^{-18}$ s)，这是人类有史以来在实验室所能得到的最短脉冲。相比之下，氢原子中电子绕核经典转动周期约为150 as。利用阿秒脉冲，人类有可能实时观察到原子内电子的各种动力学过程，制作一部“电子”大片。以研究原子瞬态吸收、宽带材料的电

光特性以及光电离的时间特性等为代表的阿秒物理这一新兴的学科，与强场物理所产生的阿秒脉冲以及所涉及的阿秒电子动力学密不可分。

啁啾放大等超短强激光技术的发展，使得人类能以前所未有的光强探索物质与强光相互作用的各种极端过程。在超短强激光脉冲电离气体形成等离子体的过程中，会产生从太赫兹波段(频率为0.1—10 THz， $1 \text{ THz} = 10^{12}$ Hz)到软X射线波段的超宽带相干辐射，为人类提供了桌面式的新光源。其背后的物理机制则与强场驱动下的原子内电子超快动力学密切相关。

在强红外激光的瞬时电场作用下，电子可以被直接从原子中“拽出”。如果光强稍弱，电子可以隧穿被电场扭曲的势垒而脱离原子束缚。但是不论何种情形，刚脱离束缚的电子要最终逃逸，还需要足够长的时间。而激光电场是不断振荡的。如果激光电场在电子还没有远离原子实时已经反向，则会驱动电子高速与母原子碰撞并复合，把它从激光场所得到的能量以光的形式辐射。这种过程发生在亚飞秒时间尺度。这就是所谓的半经典再散射模型^[1]，它合理地解释了实验观察到的谐波截止频率及奇次谐波产生：每半个周期发生一次反相的阿秒辐射，其相干叠加导致偶次谐波消失。

但是不同于对高次谐波产生过程的共识，太赫兹辐射机理存在争议^[2-12]。特别是2000年的实验发现，把基频脉冲和二倍频脉冲同时作用电离气体时，产生的太赫兹强度提高三个量级以上^[2]。改变双色场的时间延迟，太赫兹波的强度会随之发生周期性的变化。只要时间延迟300多阿秒，太赫兹辐射就可以由最强变为最弱，甚至消失。什么样的机制导致这种敏感的变化？如何实现阿秒精度的控制？所产生的皮秒(ps， $1 \text{ ps} = 10^{-12}$ s)脉宽太赫兹辐射，载波振荡只有数个周期，是天然的少周期甚至单周期脉冲，如何对它实现精细刻画和探测？对这些问题的解答取决于对强场下电子动力学过程的深入理解和精准控制。突破传统的微扰调控，实现强场相干调控和阿秒探测，是强场物理与阿秒物理领域中的一个重大课题。

2 承担的重大课题近期理论和实验研究进展

我们最近利用载波包络相位稳定超短激光脉冲,对单原子态进行强光调控,通过探测伴随产生的高次谐波和太赫兹等超宽谱辐射,对原子分子态及其动力学进行超快分辨,取得了一些理论和实验进展^[13-16]。主要包括:(1)国际上首次把阿秒钟技术应用于太赫兹辐射产生动力学过程的诊断^[14, 15],实现了利用双色场调制电子波包的相位和同步探测太赫兹辐射和阿秒辐射,时间分辨达到70 as;(2)进一步澄清了太赫兹产生机制,指出库仑势对太赫兹辐射产生具有重要贡献,阐明了再散射过程是太赫兹波和高次谐波产生的统一物理图像。与此同时,实现了高灵敏的偏振分辨太赫兹时域探测^[16]。研制的偏振灵敏的太赫兹时域光谱仪,单次扫描就可以测量任意偏振的太赫兹波形,能够精确地检测太赫兹辐射的偏振态。本文主要介绍以上两方面的进展。

2.1 阿秒钟技术首次应用于太赫兹辐射产生动力学过程的诊断

2.1.1 诊断的基本原理

为了实现阿秒精度的探测,需要一个阿秒尺度的时钟——阿秒尺度的动力学参考系。高次谐波产生就是这样一个阿秒过程。由于不同

能量电子返回母原子的特征时间差异,导致谐波具有内禀的啁啾特性:谐波辐射相位的平方近似地正比于谐波阶数,谐波发射时刻随阶数线性变化。在光强为 $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时,相邻阶数的奇次谐波发光时刻相差大约为45 as^[17]。

在基频场单独作用下,每半个周期发生一次反相的阿秒辐射,因而只有奇次谐波可被探测。当加以微弱倍频场时,由于原子与强光的非微扰相互作用,相邻时刻辐射的相位差被强烈调制,导致偶次谐波的出现。记激光时域电场为 $E(t) = E_1[\cos(\omega t) + \lambda \cos(2\omega t + \phi)]$,其中 E_1 为电场包络, λ 为倍频场与基频场峰值场强之比, ϕ 为双色场的相位差。通过分析电子沿半经典路径的作用量,可以得到电子波包返回原子核时的相位。由于倍频场的存在,电子在左右两侧返回时附加的传播相位不同,导致偶次谐波产生,其功率强度调制正比于 $\sin^2 \Delta$ ^[14, 16, 18](Δ 是左右传播相位差)。由于 Δ 依赖于各阶谐波发光时刻(谐波啁啾),通过监测偶次谐波强度随双色场相位延迟的变化,可标定双色场绝对相位延迟。因而为双色场调控的偶次谐波辐射提供了一个内禀的阿秒时钟,可实现对太赫兹辐射产生的动力学过程的诊断。

2.1.2 诊断的实验技术和方法

基于前述原理,我们利用偏振平行的双色场(800 nm、25 fs红外脉冲和它的倍频场)对氩分子电离动力学进行控制,首次对产生的高次谐波辐射和太赫兹辐射进行同步测量。实验装置如图1所示。其中倍频场的光强约为基频的5%。所测定的偶次谐波强度随双色场相位延迟的变化,如图2所示,时间分辨率达到70 as。在每个时间延迟同时监测太赫兹辐射(强度和波形),实验测得太赫兹辐射在时间延迟为倍频场的周期的0.8倍时达到最强,与广泛应用的四波混频理论和定向光电流模型预言的太赫兹产生最优时间延迟皆有所偏离。

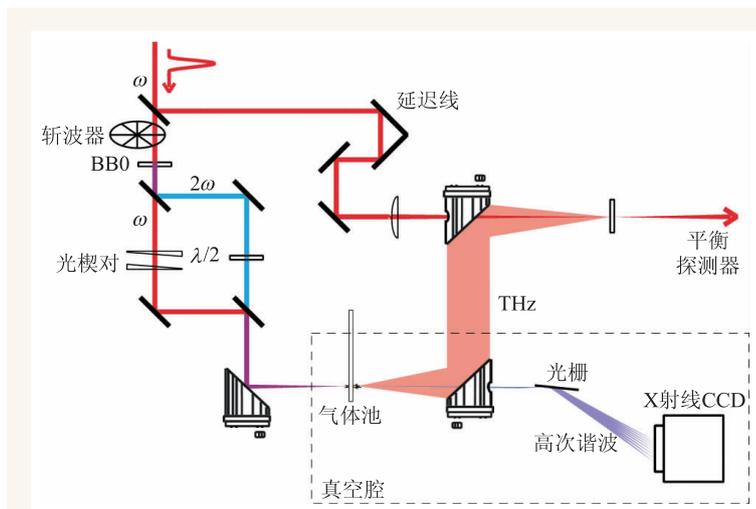


图1 双色场产生太赫兹和偶次谐波实验装置^[15]

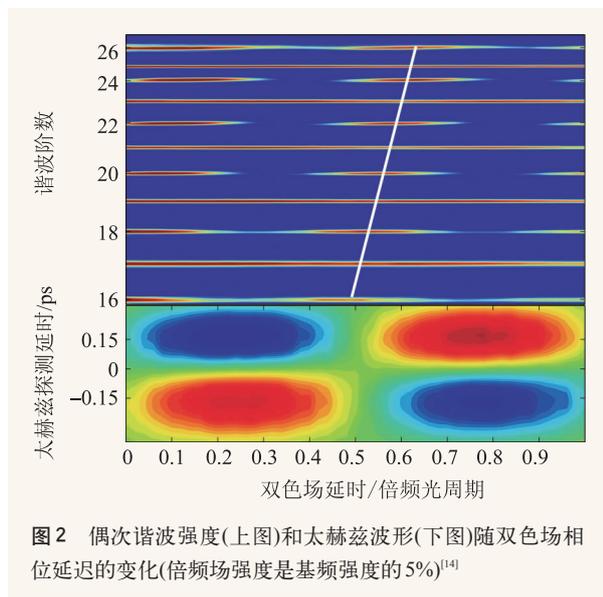


图2 偶次谐波强度(上图)和太赫兹波形(下图)随双色场相位延迟的变化(倍频场强度是基频强度的5%)^[14]

2.1.3 实验结果与理论分析

四波混频理论认为,太赫兹辐射源于三阶非线性过程,其功率强度正比于 $\chi^2 \cos^2\phi$ 。其中 χ 为媒质的三阶非线性极化率。但是对于双色场电离气体产生的太赫兹而言,无论是中性气体还是电离后的等离子体,其三阶非线性极化率都太小,不足以解释实验所测得的高强度太赫兹^[2]。显然太赫兹的产生与光场引起的超快电离密切相关。基于此,光电流模型被提出^[8]。该模型认为,倍频场可以调控光电子在光场中的传播特性,由光电子传播时所产生的定向净电流被原子场加速,导致太赫兹辐射。该模型还预言太赫兹强度正比于定向电流强度,随双色场相位延迟的调制为 $\sin^2\phi$ ^[8]。显然两种模型预言的太赫兹最强时对应的相位分别为零和 $\pi/2$,与我们的实验观测值偏离。

在光电流模型中,假设隧穿后电子速度为零,忽略原子势场,只考虑电子在激光场中的经典运动。实际上,隧穿电子波包具有横向和纵向动量分布。这就需要分别采用经典轨迹和量子波包^[13]进行动力学计算,通过计算可以发现,电离电

子波包在激光场和库仑场作用下与母原子的“软碰撞”有着很重要的影响。如图3所示。隧穿后的电子或者直接逃逸,与库仑场“半碰撞”,形成逃逸电流辐射太赫兹,或者返回原子实,与库仑场发生“完全碰撞”。如果复合,则辐射高次谐波。如果电子发生前向散射,则形成再散射电流,辐射太赫兹。在忽略库仑场对电子动力学的影响时,单色场驱动下的逃逸电流与再散射电流是对称的。但是考虑库仑场时,再散射电流由于库仑聚焦而被强化。从而导致倍频场调制时太赫兹在 0.8π 时辐射最强^[14, 15]。这样高次谐波辐射和太赫兹辐射可以用统一的图像进行解释,有助于理解双色场电离气体产生太赫兹机制,发展高效率和高强度的太赫兹源产生手段。深入理解原子内部发生的物理过程,开启了将太赫兹与阿秒辐射对动力学过程进行刻画的新篇章。我们的研究工作涉及到强激光脉冲与原子分子相互作用的一个中心问题:激光场与库仑场双势耦合下的电子动力学^[9]。由于库仑聚焦,阈值上电离的低能电子谱和阈值下谐波谱都会表现出丰富的结构^[20-22]。可以预期,利用太赫兹辐射的相干探测,将获得更多有关动力学的原位信息。

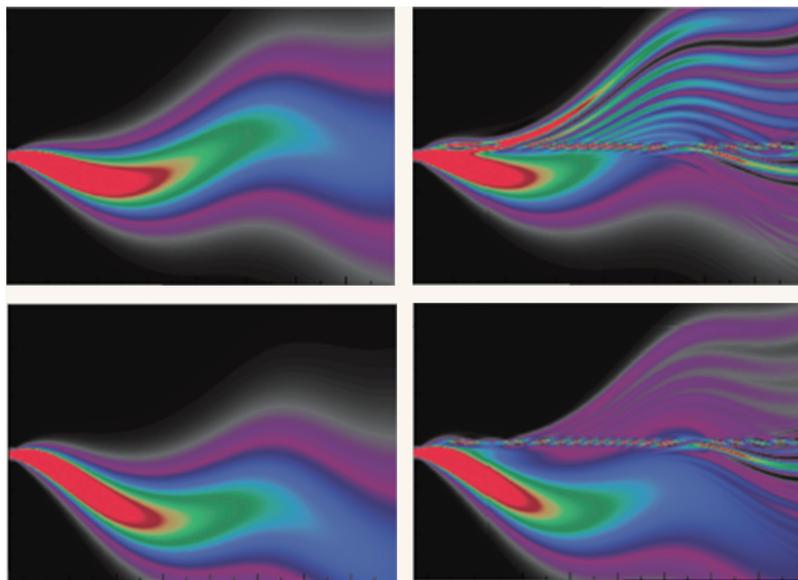


图3 隧穿电离后电子几率密度在后续时刻的变化(上图和下图分别对应再散射电子波包和直接逃逸波包无库仑场(左)和有库仑场(右)的情形。与库仑场的软碰撞会导致再散射时电子出射电流增大,太赫兹辐射增强)^[14]

2.2 高灵敏的偏振分辨太赫兹时域探测的实现

太赫兹波通常是指频率为0.1—10 THz(1 THz = 10^{12} Hz)的电磁辐射。由于太赫兹波长介于红外和微波之间,对应大分子振转光谱波段,在信息与通信,雷达,光谱,成像与检测等领域具有独特应用价值和优势。但是产生与探测太赫兹波所面对的巨大挑战,仍然有待克服。随着超快光学的快速发展,光子学方法产生太赫兹如差频、混频、光电导、光整流等取得了很大进展,其中利用超短脉冲电离气体可以产生峰值场强达到Mv/cm的强太赫兹脉冲,极大地推动了基于强太赫兹光源的非线性物理研究,如非简谐分子振动和晶格振动^[23, 24],量子阱在太赫兹波段的高次谐波产生^[25],激子的场致电离^[26]等。但是不断出现的各种新型应用,如操纵分子振转^[27],增强谐波截止波段^[28],制备单个圆偏振阿秒脉冲^[29]等,都要求更强的太赫兹以及更宽的谱宽。

超宽带太赫兹时域光谱对于材料表征、生物效应探测、载流子动力学相干探测等具有意义。但是在采用电光采样、光电导等时域探测太赫兹的技术方案时,载流子寿命和声子吸收等效应会限制所能探测的太赫兹带宽,而利用空气电离探测太赫兹,则可获得覆盖整个太赫兹波段的探测带宽。偏置电压作用下的空气,其空间对称性不再保持,空气在与太赫兹和红外脉冲(800 nm)作用时,会产生二倍频光(400 nm)。改变太赫兹脉冲和红外脉冲延迟时,二倍频光强度会受到调制,其调制幅度正比于太赫兹时域电场,此即为目前广泛采用的空气偏压相干探测(air biased coherent detection, 缩写为ABCD)太赫兹技术^[30]。但是要获得太赫兹辐射的偏振特性却一直是个难题,通常是通过测量其正交分量的相对相位和振幅大小来确定。这种方法需要进行两次独立的测量,偏振方向的分辨率很难提高。同时对于少周期甚至一个周期的太赫兹脉冲,由于

载波包络相位,其正交分量的光谱有可能不同,脉冲的椭圆率会随时间不断变化。要对它进行精确刻画,就要求在频域上测得谱宽内所有成分的正交振幅和相位,或者在时域上精确标定瞬时电场大小和空间指向^[23]。

我们通过施加两个随时间简谐振动的正交偏置电压,在空间上形成一个随时间旋转的直流偏置电场,利用圆偏振光,通过空气偏压相干探测技术对太赫兹瞬时电场方向进行探测,一次扫描便可以得到任意偏振的太赫兹波形,如图4所示。在实验室坐标系下,给定时间延迟 τ ,偏置场和太赫兹场在时刻 T 的合成场的振幅平方为 $E_{\Sigma}^2 = E_{\text{bias}}^2 + E_{\text{T}}^2(\tau) + 2E_{\text{bias}}E_{\text{T}}(\tau)\cos(\psi t - \Theta_{\text{T}}(\tau))$,其中 E_{bias} 为偏置场大小,它由相位差为 π 的正交偏置电压 $U_0 \cos(\psi t)$ 和 $U_0 \sin(\psi t)$ 提供。 E_{bias} 的指向随时间 t 而变,并以角速度 ψ 转动。太赫兹场振幅和指向分别为 $E_{\text{T}}(\tau)$ 和 $\Theta_{\text{T}}(\tau)$ 。基于三阶非线性理论,二次谐波强度正比于 E_{Σ}^2 。利用光电倍增管锁相探测二次谐波强度,可以得到太赫兹的瞬时电场。图5是针对椭圆偏振太赫兹探测的一个实例。圆偏振基频与线偏振倍频光所产生的太赫兹波的偏振方向随时间变化。基于前述的方案,通过单次扫描,可以同时得到太赫兹水平和垂直分量的时域波形,太赫兹瞬时电场角向分辨小于1个毫弧度。

随着偏振太赫兹产生技术的发展,特别是单

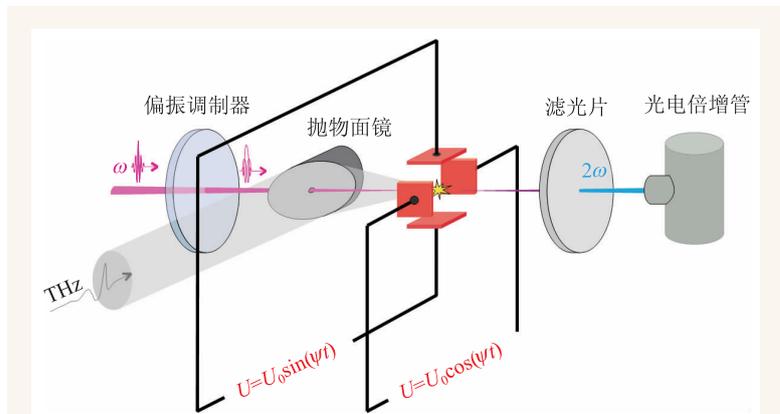


图4 偏振敏感的太赫兹波检测方案。对空气施加旋转偏置电场,结合时间可延迟的飞秒脉冲,太赫兹的瞬时偏振信息可以通过检测所转化的二次谐波光强进行相干探测。为避免传播效应的影响,要求飞秒激光与太赫兹作用距离应远小于太赫兹波瑞利长度

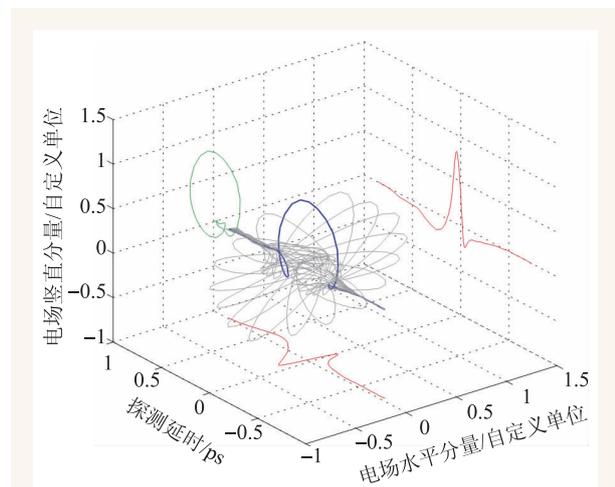


图5 圆偏振基频与线偏振倍频光电离气体产生的太赫兹辐射偏振随激光相对相位的变化

周期太赫兹脉冲制备技术发展, 这种对任意波形、任意偏振太赫兹的精确时域探测技术, 在偏振太赫兹时域光谱, 手征材料旋光特性的表征, 磁性材料中自旋波的超快动力学探测等方面将获得重要应用。

参考文献

[1] Corkum P B. Phys. Rev. Lett., 1993, 71: 1994
 [2] Cook D J, Hochstrasser R M. Opt. Lett., 2000, 25: 210
 [3] Kress M, Löffler T, Eden S *et al.* Opt. Lett., 2004, 29: 1120
 [4] Krieb M *et al.* Nature Phys., 2006 2: 327
 [5] Xie X, Dai J, Zhang X C. Phys. Rev. Lett., 2006, 96: 075005
 [6] Gildenburg V B, Vvedenskii N V. Phys. Rev. Lett., 2007, 98: 245002
 [7] Kim K Y, Glowonia J H, Taylor A J *et al.* Opt. Express, 2007, 15: 4577
 [8] Kim K Y, Glowonia J H, Taylor A J *et al.* Nature Photon., 2008, 2: 605
 [9] Wen H, Lindenberg A M. Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 023902
 [10] Dai J, Karpowicz N, Zhang X C. Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 023001
 [11] Babushkin I, Kuehn W, Köhler C *et al.* Phys. Rev. Lett., 2010, 105: 053903
 [12] Bergé L, Skupin S, Köhler C *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 073901
 [13] Zhou Z, Zhang D, Zhao Z *et al.* Phys. Rev. A, 2009, 79: 063413
 [14] Zhang D, Lü Z, Meng C *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 109: 243002
 [15] Lü Z, Zhang D, Meng C *et al.* J Phys. B, 2013, 46: 155602

3 结束语与展望

本文探讨了利用倍频场、偏置场以及太赫兹对红外强激光脉冲与气体相互作用进行强场调控, 来实现太赫兹和其他波段辐射的同步产生与探测。超短光脉冲操控手段的发展, 如载波包络相位稳定, 偏振控制、脉冲整形等, 将会进一步推动强场驱动下的电子动力学的超快调控技术的发展。太赫兹辐射作为电子动力学的表征, 相比于电子能谱, 具有相干原位探测的优势。同时它又可作为可精确控制波形的抽运源, 太赫兹辐射也提供了一种新型手段, 将在分子振转波包, 里德伯电子波包制备, 超短阿秒脉冲产生, 材料内电子自旋动力学控制等领域得到广泛应用。

致谢 感谢吕治辉、张栋文等参与该研究工作。

[16] Lü Z, Zhang D, Meng C *et al.* Appl. Phys. Lett., 2012, 101: 081119
 [17] Kazamias S, Balcou P. Phys. Rev. A, 2004, 69: 063416
 [18] Dudovich N, Smirnova O, Levesque J *et al.* Nature Phys., 2006, 2: 781
 [19] Krausz K, Ivanov M. Rev. Mod. Phys., 2009, 81: 163
 [20] Blaga C I *et al.* Nature Phys., 2009, 5: 335
 [21] Quan W *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 093001
 [22] Li M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 111: 023006
 [23] Jewariya M, Nagai M, Tanaka K. Phys. Rev. Lett., 2010, 105: 203003
 [24] Zaks B, Liu R B, Sherwin M S. Nature, 2012, 483: 580
 [25] Katayama I, Aoki H, Takeda J *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 109: 097401
 [26] Ewers B, Köster N S, Woscholski R *et al.* Phys. Rev. B, 2012, 85: 075307
 [27] Fleischer S, Zhou Y, Field R W *et al.* Phys. Rev. Lett., 2011, 107: 163603
 [28] Kovács K, Balogh E, Hebling J *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 108: 193903
 [29] Yuan K, Bandrauk A. Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 023003
 [30] Dai J, Xie X, Zhang X C. Phys. Rev. Lett., 2006, 97: 103903