

阿秒脉冲的产生和测量

许思源 白晋涛

(省部共建西部能源光子技术国家重点实验室,西北大学光子学与光子技术研究所/
物理学院,西安市激光红外学会, 710127)

1. 引言

阿秒脉冲(attosecond pulse)是迄今为止人类所掌握最短的时间工具,1阿秒(as)等于 10^{-18} s。原子的内壳层中电子的运动特征时间就处于阿秒量级,例如电子绕原子核旋转一周的时间约为150 as,为了测量该时间尺度的过程就要用到具备相应分辨能力的工具。飞秒脉冲通过锁模技术和非线性压缩技术能够在可见光及红外波段获得,然而为了得到更短的阿秒脉冲就需要激光的中心波长转移到光周期在阿秒量级的紫外波段(Extreme Ultraviolet, XUV)。

目前在紫外波段获得阿秒脉冲是通过超强的飞秒激光脉冲与物质的极端非线性相互作用产生的高次谐波中获得。当飞秒激光脉冲的峰值功率密度达到 10^{14} W/cm²时,飞秒激光脉冲通过气体会与气体的原子发生相互作用,原子的最外层电子会发生隧穿电离并在激光场的作用下加速运动,随着激光场的反向变化电子减速并改变运动方向,当电子加速飞向母核时有几率再回到原子核附近并与原子核复合,而电子在激光场中获得的能量会以高能光子的形式释放出来,释放出光子的频率是驱动激光的奇数倍,这种是驱动光奇次倍的高能光子被称为高次谐波(High-order Harmonic Generation, HHG)。20世纪80年代,人们首次在激光电离气体原子的实验中观察到了高次谐波的产生^[1,2]。1993年,Corkum提出了强场电离的三步模型来解释高次谐波的产生^[3],该模型成为后来高次谐波和阿秒光学的原始理论基础。1994年,基于此模型Corkum

等人利用量子理论对高次谐波进行了细致的描述,并预言了孤立阿秒脉冲(Isolated Attosecond Pulse, IAP)产生的理论和方法^[4]。

2001年,奥地利科学家Hentschel等人通过对高次谐波光谱滤波首次在极紫外波段获得了650 as孤立阿秒脉冲^[5]。随着激光技术的不断改进,最短阿秒脉冲记录被不断刷新。2004年Kienberger等人测量到了250 as的孤立脉冲^[6]。2006年Sansone等人获得了130 as的孤立阿秒脉冲^[7]。2008年Goulielmakis等人将孤立阿秒脉冲的宽度推进到小于100 as,最终测量得到80 as的孤立阿秒脉冲^[8]。2012年美国中佛罗里达大学常增虎教授所在实验团队获得了67 as的孤立脉冲^[9],2017年美国中佛罗里达大学和瑞士苏黎世联邦理工大学在软X射线波段分别将最短阿秒脉冲世界记录推进到53 as和43 as^[10,11],这是目前已经报道的最短激光脉冲世界纪录。2013年,在中国科学院物理研究所魏志义研究员的指导下,我国首次获得了160 as宽度的孤立阿秒脉冲^[12]。2020年,华中科技大学^[13]、国防科技大学^[14]和中国科学院西安光学精密机械研究所^[15]的研究团队也先后实现了孤立阿秒脉冲的产生和测量。

2. 阿秒脉冲的产生原理

产生高次谐波的三步模型可简单描述为:第一步,当线偏振电场经过原子,原子的库仑势发生改变,此时电子由于库仑势的扭曲容易逃离母核,最终在隧穿电离的作用下变成自由态。第二步,电子在外电场的作用下先加速远离母核,并当电场变为

反向时,电子又会根据电场反向加速回到母核附近;第三步,电子与母核将发生三种物理过程:弹性散射、非弹性散射以及与母核复合,如图1所示。非弹性散射指电子回到母核附近与母核周围的电子发生碰撞,两个电子同时飞出,导致双电离的产生;

弹性散射指电子飞回母核与母核周围电子发生碰撞,被碰撞的电子成为自由态,而先被电离的电子与母核复合;第三种情况,电子与母核复合时,其在外部电场获得的动能将以光子的形式释放,最终形成高次谐波辐射。

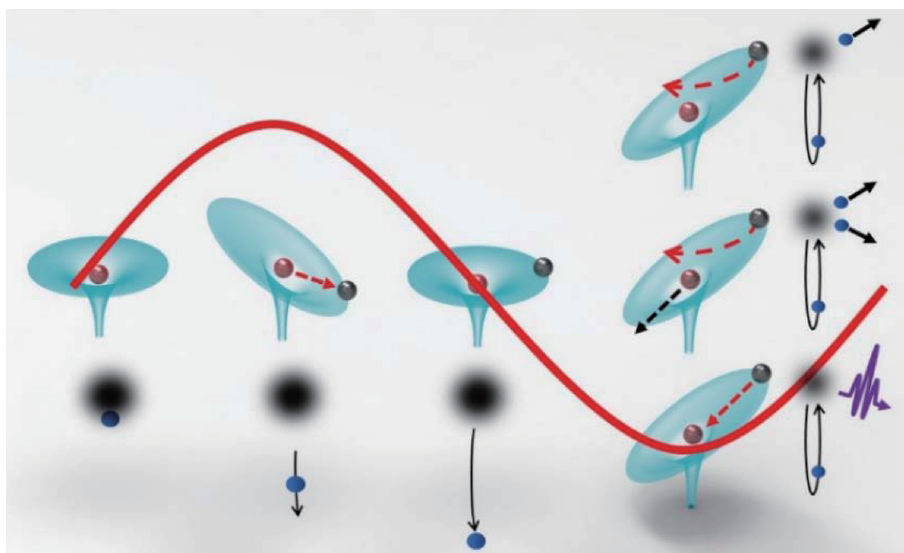


图1 三步模型示意图

高次谐波作为原子在强激光场电离过程中由电子再碰撞产生的紫外相干辐射,在频域上表现为等间距光梳,而在时域上则是单个脉冲宽度为几十至几百阿秒的相干光脉冲序列。由傅里叶变换关系可知中心波长在紫外波段的激光脉冲,其光周期就处于阿秒量级,在紫外甚至极紫外波段获得宽的连续光谱就能够得到极短的孤立阿秒脉冲,如图2所示。它完全继承了驱动激光的光学属性,具有很好的时空相干性和方向性。高次谐波截止区的光子能量通过简单的牛顿力学计算可近似表示为:

$$h\omega = I_p + 3.17U_p$$

其中 I_p 为原子的电离能, U_p 为电子在外电场获得的有质动能。

3. 孤立阿秒脉冲产生技术

由三步模型可知,激光场中每半个周期产生一个极紫外高次谐波脉冲,理论上使用半周期的飞秒

脉冲就能直接产生孤立阿秒脉冲,但是这样的驱动光源参数在实验中很难实现,实验中获得到1~2个周期的飞秒脉冲较为常见。多周期的脉冲包络内包含多个光场,如图3所示,使用多周期飞秒脉冲产生阿秒脉冲时脉冲内每个电场产生一个阿秒脉冲,得到的高谐波就表现为若干个阿秒脉冲组成的阿秒脉冲串,由于干涉作用在光谱上显示为分立的光谱。

产生孤立阿秒脉冲还需要锁定驱动光源的载波包络相位(Carrier-envelope phase, CEP), CEP是指脉冲包络与内部电场峰值间的相位差,如图4所示,在周期量级的飞秒脉冲中载波和包络峰值之间的相位差决定了周期量级飞秒脉冲包络内载波电场的分布。周期量级飞秒脉冲的 CEP 直接影响了产生高次谐波时电子所处的电场分布,未锁定 CEP 时每一个脉冲由于脉冲内电场分布不同产生的阿秒脉冲光谱和宽度都是不同的。

阿秒脉冲选通技术降低了孤立阿秒脉冲对驱动光光周期的要求,使用1~2个周期甚至是多个

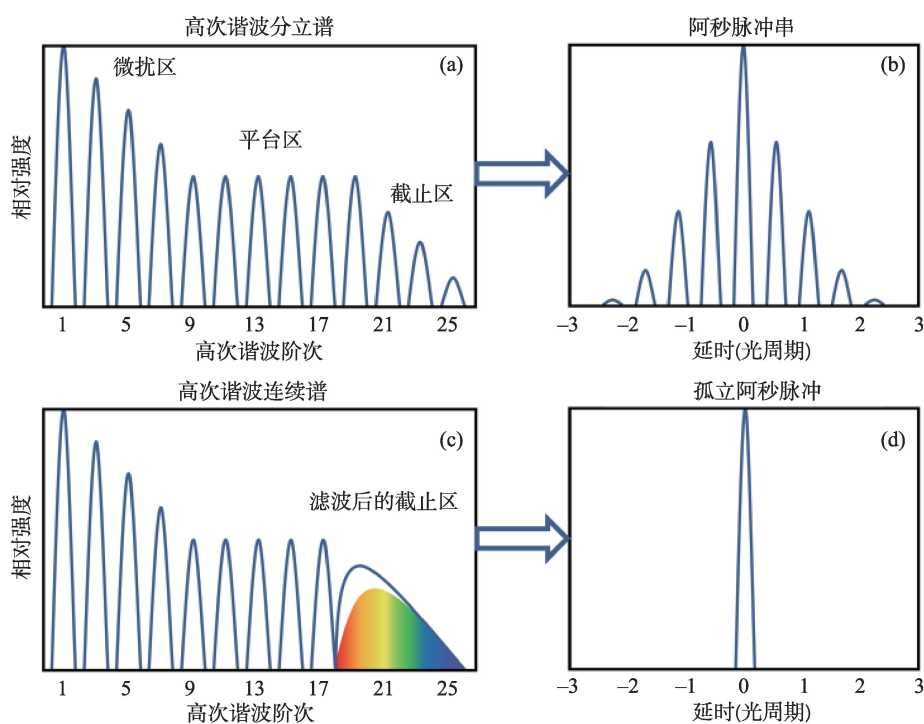


图2 阿秒脉冲和孤立阿秒脉冲的产生

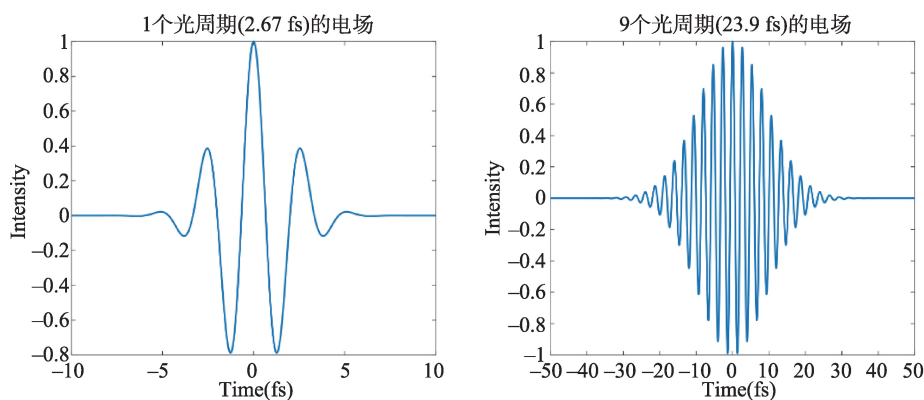


图3 1个周期和9个周期脉冲内电场分布

周期也能够实现孤立阿秒脉冲的输出。常用阿秒脉冲选通技术包括振幅选通^[8](Amplitude Gating)、电离选通^[16](Ionization Gating)、偏振选通^[7](Polarization Gating, PG)、双光选通^[17](Double Optical Gating, DOG)、空间选通^[18, 19]等,如图5所示^[20]。

振幅选通^[8]需要 CEP 锁定在 0 或 π 宽度小于两个光周期的脉冲,此时脉冲内的电场与包络峰值重合,仅有这个电场峰值附近电离出的电子可以获得更高的动能,在截止区附近产生的连续谱中分离出一个孤立的阿秒脉冲,如图5(a)所示。电离选通^[16]

是通过在脉冲前沿的1~2个周期的电场中产生高次谐波,而这之后的电场由于电离破坏了相位匹配条件,仅在脉冲前沿产生了一个相位匹配窗口得到阿秒脉冲辐射,如图5(b)所示。和振幅选通相同,这两种方法都是在高次谐波的截止区得到连续光谱并从中得到孤立阿秒脉冲,如图5(e)所示。

偏振选通^[7]和其衍生的干涉偏振选通等技术都是利用非线性偏光难以产生高次谐波这一特性,经过光场合成产生线偏振的相位匹配窗口,如图5(c)所示,相应的偏振选通产生的阿秒脉冲光谱为连续光

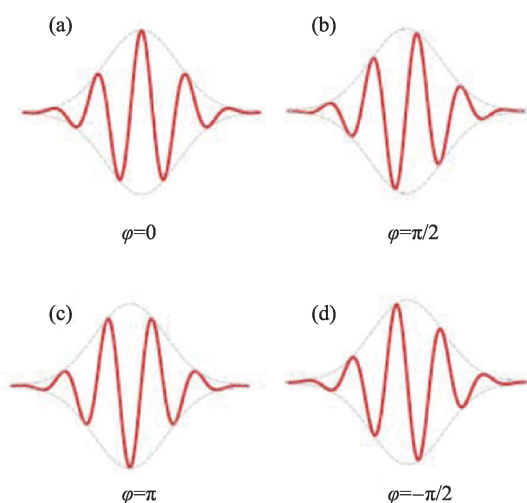


图4 CEP对少周期脉冲内电场分布的影响

谱,如图5(f)所示。双光选通^[17]是将基频光和其倍频光同时聚焦进入气体靶内,倍频光能够破坏原基频光的电场对称性,使得原基频光的电场周期增加了一倍。由于倍频光场的电场振荡频率是基频光

的两倍,所以基频光正向电场与倍频光电场叠加,而负电场遭到倍频光电场的破坏。由于对称性的破坏,每一个周期产生一个阿秒脉冲,最终将选通门宽的要求从半个周期变为一个周期。空间选通是通过提供角色散使脉冲中的每一个电场的相速度方向不同,产生波前倾斜在空间上分离开每个电场,并从分离电场中获得孤立阿秒脉冲,如图5(d)所示,常见的空间选通包括非共线选通和阿秒灯塔^[18, 19](Attosecond Lighthouse)。

4. 阿秒脉冲测量技术

阿秒脉冲的脉冲宽度远远小于探测器响应及分子运动的时间,无法使用常规测量手段测量其脉冲宽度,只能通过阿秒脉冲与原子相互作用的下电离过程中获得的信息计算得到。RABITT(Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon

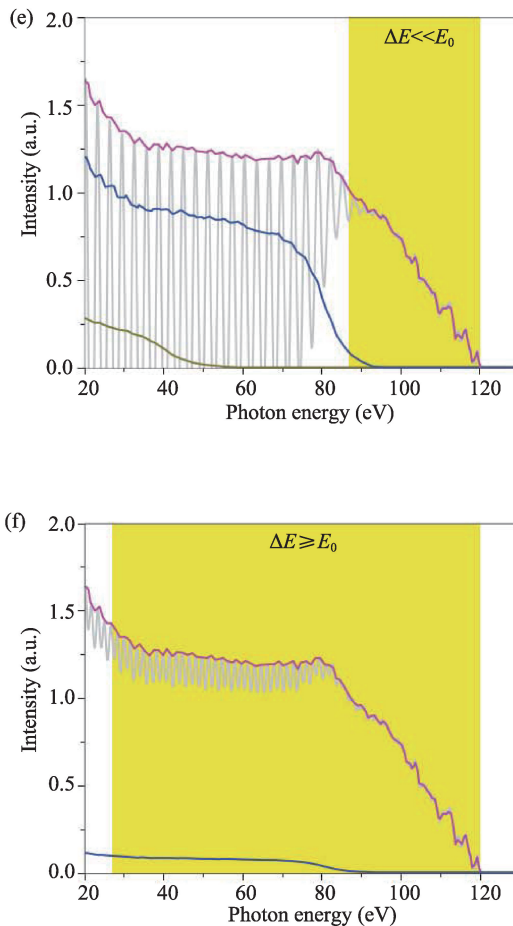
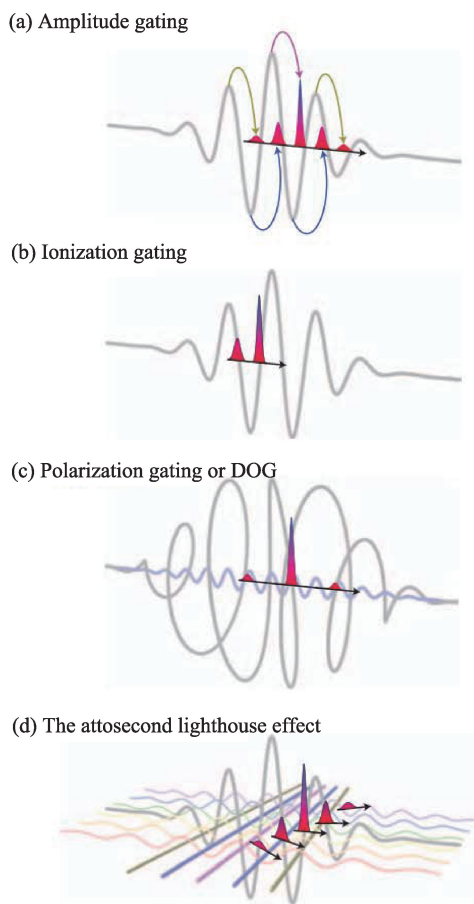


图5 (a)-(d),振幅选通、电离选通、偏振选通、空间选通原理;(e)、(f),不同选通方式在XUV波段产生连续谱位置^[20]

Transitions)是最早提出基于脉冲互相关的相位测量方法^[21],其原理是电子在XUV脉冲的作用下从初态跃迁至电离态的过程中,受到飞秒驱动光的调制,在高次谐波谱上产生边带,通过计算能够得到该边带的光电子能谱强度的表达式;在激光脉冲的长脉冲近似下,可以简化得到相邻两个阶次高次谐波之间的相位差与驱动光频率、驱动光与XUV光延时之间的关系;边带光电子谱强度变化周期为驱动激光载波频率的两倍,结合目标气体的能级结构可以得到相位关系,并通过傅里叶变换就能得到脉冲的时域信息。

随后 laser-assisted lateral X-ray photo ionization 技术^[22]的提出简化了目标气体能级结构对阿秒脉冲探测的影响。其原理是使用阿秒脉冲与驱动激光与气体相互作用,使气体在XUV光作用下发生电离,得到受XUV光的相位、强度、振荡周期影响的电子的初始动量分布;随后,在驱动光场的调制下电子的动量分布会发生改变,通过两者之间的延迟调节会影响所探测到电子能谱的宽度,而能谱的调制深度能反映XUV脉冲的宽度。

通过对高次谐波光谱信息的分析也能部分得出脉冲信息^[23],这种不通过测量光电子谱的方法又被称为全光学测量。实验中使用非共线的两路光共同作用在气体上,一束光使用偏振选通产生孤立阿秒脉冲,另一束经过倍频获得二次谐波作为扰动脉冲调制高次谐波光谱形貌,改变延时可以获得某一能量光谱区域的空间形貌随延时变化的演化图(trace),对该演化图反演即可得出阿秒脉冲的相位情况。

在飞秒脉冲的测量中通常使用自相关的方法测量脉冲宽度,阿秒脉冲也能通过自相关与双光子电离作用的结合获得阿秒脉冲的时域信息,这种方法称为阿秒自相关(attosecond autocorrelation)。实验中在He的双光子电离实验中通过改变两束阿秒脉冲的延迟,探测He⁺离子产率随延时变化可以得到所测量的阿秒脉冲宽度^[24]。

阿秒条纹相机^[25](attosecond streak camera)同样

是通过阿秒脉冲与驱动光脉冲的互相关作用,其测量关键点在于利用亚周期振荡作为确定阿秒脉冲脉宽的时间基准,该基准仅当XUV脉宽小于驱动光时成立,同时将XUV光产生的光电子信息同时对应能量与角度上。当激光场为线偏振时,对于给定的观测角度,光电子的能谱宽度能反映脉宽信息;当激光场为圆偏振时,在一定能量下光电子的角度分布能反映脉宽信息。这一技术也成为目前孤立阿秒脉冲测量的主要方法。

在根据测量结果提取阿秒脉冲的相位信息时,需要通过理论的反演计算来获得。其思路是:首先通过求解薛定谔方程得到阿秒脉冲和驱动光互相关得到电子能谱的关系;然后将预估的阿秒脉冲代入公式得到电子能谱,并与实验上测到的电子能谱相比较,获得误差函数;最后通过算法的优化寻找使误差函数极小的阿秒脉冲相位作为结果并输出。

5. 总结

阿秒脉冲将超快过程的时间分辨测量从飞秒领域跨进阿秒世界的大门,人们拥有了直接测量阿秒量级电子动力学行为的工具,开启了原子内动力学过程研究的大门。物理、化学、生物医学都是基于原子分子层面微观粒子的相互作用的结果,阿秒脉冲的出现为这些领域的研究提供了全新的思路与技术手段,为新的革命性研究成果奠定了基础。

参考文献

- [1] A McPherson, G Gibson, H Jara, U Johann, T S Luk, I A McIntyre, K Boyer and C K Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *Journal of the Optical Society of America B*, 4(4), 595-601, 1987.
- [2] M Ferray, A L'Huillier, X F Li, L A Lompre, G Mainfray and C Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3), L31-L35, 1988.
- [3] P B Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(13), 1994-1997, 1993.
- [4] P B Corkum, N H Burnett and M Y Ivanov. Subfemtosecond

- pulses. *Optics Letters*, 19(22), 1870-1872, 1994.
- [5] M Hentschel, R Kienberger, C Spielmann, G A Reider, N Milosevic, T Brabec, P Corkum, U Heinzmann, M Drescher and F Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414, 2001.
- [6] R Kienberger, E Goulielmakis, M Uiberacker, A Baltuska, V Yakovlev, F Bammer, A Scrinzi, T Westerwalbesloh, U Kleineberg, U Heinzmann, M Drescher and F Krausz. Atomic transient recorder. *Nature*, 427(6977), 817-821, 2004.
- [7] G Sansone, E Benedetti, F Calegari, C Vozzi, L Avaldi, R Flammini, L Poletto, P Villoresi, C Altucci, R Velotta, S Stagira, S De Silvestri and M Nisoli. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314(5798), 443-446, 2006.
- [8] E Goulielmakis, M Schultze, M Hofstetter, V S Yakovlev, J Gagnon, M Uiberacker, A L Aquila, E M Gullikson, D T Attwood, R Kienberger, F Krausz and U Kleineberg. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 320(5883), 1614-1617, 2008.
- [9] K Zhao, Q Zhang, M Chini, Y Wu, X W Wang and Z H Chang. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Optics Letters*, 37(18), 3891-3893, 2012.
- [10] T Gaumnitz, A Jain, Y Pertot, M Huppert, I Jordan, F Ardana-Lamas and H J Worner. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. *Optics Express*, 25(22), 27506-27518, 2017.
- [11] J Li, X Ren, Y Yin, K Zhao, A Chew, Y Cheng, E Cunningham, Y Wang, S Hu, Y Wu, M Chini and Z Chang. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nature Communications*, 8(1), 186, 2017.
- [12] M J Zhan, P Ye, H Teng, X K He, W Zhang, S Y Zhong, L F Wang, C X Yun and Z Y Wei. Generation and Measurement of Isolated 160-Attosecond XUV Laser Pulses at 82 eV. *Chinese Physics Letters*, 30(9), 093201, 2013.
- [13] Z Yang, W Cao, X Chen, J Zhang, Y Mo, H Xu, K Mi, Q Zhang, P Lan and P Lu. All-optical frequency-resolved optical gating for isolated attosecond pulse reconstruction. *Optics Letters*, 45(2), 567-570, 2020.
- [14] X Wang, L Wang, F Xiao, D Zhang, Z Lü, Jianmin Yuan and Z Zhao. Generation of 88 as Isolated Attosecond Pulses with Double Optical Gating. *Chinese Physics Letters*, 37(2), 023201, 2020.
- [15] 王向林, 徐鹏, 李捷, 袁浩, 白永林, 王屹山, 赵卫. 利用自研阿秒条纹相机测得 159 as 孤立阿秒脉冲. *中国激光*, 47(4), 415002, 2020.
- [16] W Cao, P Lu, P Lan, X Wang and G Yang. Single-attosecond pulse generation with an intense multicycle driving pulse. *Physical Review A*, 74(6), 063821, 2006.
- [17] H Mashiko, S Gilbertson, C Li, S D Khan, M M Shakya, E Moon and Z Chang. Double Optical Gating of High-Order Harmonic Generation with Carrier-Envelope Phase Stabilized Lasers. *Physical Review Letters*, 100(10), 103906, 2008.
- [18] H Vincenti and F Quéré. Attosecond Lighthouses: How To Use Spatiotemporally Coupled Light Fields To Generate Isolated Attosecond Pulses. *Physical Review Letters*, 108(11), 113904, 2012.
- [19] M Louisy, C L Arnold, M Miranda, E W Larsen, S N Bengtsson, D Kroon, M Kotur, D Guénot, L Rading, P Rudawski, F Brizuela, F Campi, B Kim, A Jarnac, A Houard, J Mauritsson, P Johnsson, A L'Huillier and C M Heyl. Gating attosecond pulses in a noncollinear geometry. *Optica*, 2(6), 2015.
- [20] M Chini, K Zhao and Z Chang. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nature Photonics*, 8(3), 178-186, 2014.
- [21] R E F Silva and Á Jiménez-Galán. Reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon interband transitions in solids. *Physical Review A*, 106(5), 053103, 2022.
- [22] M Drescher, M Hentschel, R Kienberger, G Tempea, C Spielmann, G A Reider, P B Corkum and F Krausz. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 291(5510), 1923-1927, 2001.
- [23] K T Kim, C Zhang, A D Shiner, S E Kirkwood, E Frumker, G Gariepy, A Y Naumov, D M Villeneuve and P B J N P Corkum. Manipulation of quantum paths for space-time characterization of attosecond pulses. 9, 159-163, 2013.
- [24] P Tzallas, D Charalambidis, N A Papadogiannis, K Witte and G D Tsakiris. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 426(6964), 267-271, 2003.
- [25] J Itatani, F Quéré, G L Yudin, M Y Ivanov, F Krausz and P B Corkum. Attosecond Streak Camera. *Physical Review Letters*, 88(17), 173903, 2002.