

阿秒脉冲的相干衍射成像

李博洋¹ 王舒琪¹ 王虎山^{1,2} 付玉喜^{1,2}

(1. 中国科学院西安光学精密机械研究所,阿秒科学与技术研究中心 710119;

2. 中国科学院大学 100049)

1. 背景介绍

从宏观物体到微观粒子,一切都在持续地运动和变化。为了更深入地理解这些现象的本质特征,仅仅关注静态特性是不够的,还需要对它们的运动和发展进行时序测量和瞬态分析。随着人类探索自然的脚步进入了微观世界,不仅空间分辨率需要不断提高,时间分辨率也必须相应提升,以捕捉越来越快的变化过程。如图1所示,电子器件的响应时间一般是纳秒(10^{-9} 秒)量级,分子的转动和振动一般发生在皮秒(10^{-12} 秒)至飞秒(10^{-15} 秒)的时间尺度上,而当涉及到原子内部的电子运动时,这一时间尺度进一步缩短到阿秒(10^{-18} 秒)量级。因此,要精确探测如此快速的过程,就需要使用与这些特征时间、空间相匹配的超快探测手段。

为了在更高的空间和时间分辨率下观察物质世界,科学家们不断开发出了各种先进的成像技术。成像过程的本质为光场函数在某一平面(如视网膜、相机传感器靶面)上一段时间内的积分,积分

时间(曝光时间)越短,能够捕捉分辨的动态变化越快,则时间分辨率越高。1827年,法国的尼埃普斯用日光刻蚀法,经过八小时曝光拍摄了第一张照片。受限于手动快门,之后的一段时间人们只能对静物成像。直到1851年,英国的塔尔博特利用莱顿瓶实现极短时间的曝光,发明出最早的高速摄影。1870年,英国的迈布里奇通过多台照相机实现了对骑手骑马快速奔跑的瞬间进行拍摄,如图2(a)所示,为分幅相机的起源。此后人们对补偿装置和成像装置等进行多次改进,使高速摄影帧频进一步提升。帧频即每秒显示的帧数,帧频越高,记录的运动过程越流畅精细。如要拍摄子弹的轨迹,需要每秒1000帧的高速摄影机,而拍摄核爆过程则需要每秒几十万到数百万帧的超高速摄影机。中国科学院西安光学精密机械研究所于1964年成功研制出每秒20万帧的ZDF-20型转镜式高速相机,拍摄了我国第一次原子弹试验的瞬变过程。该相机的光路如图2(b)所示,高速旋转的反射镜相当于高速光学快门,从而在扇形排列的底片上记录下超快过程的影

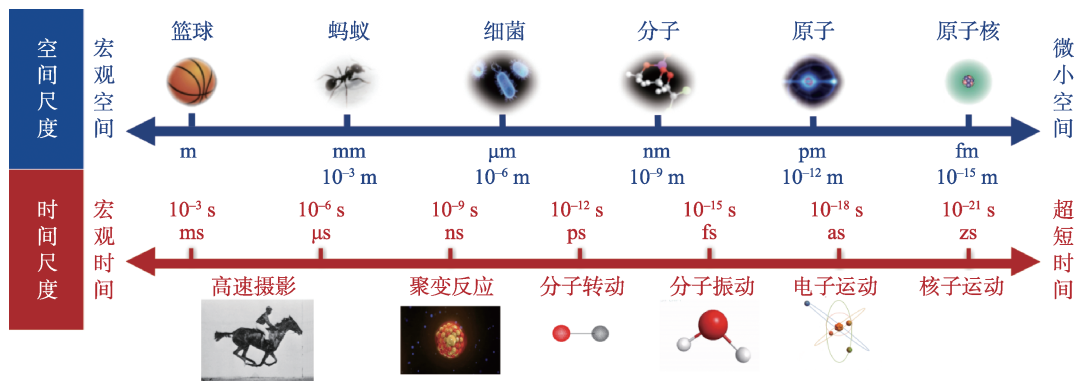


图1 各物理过程所对应的时间与空间尺度

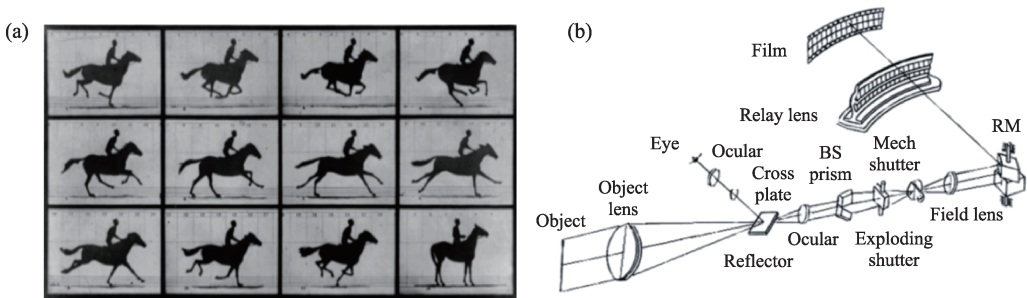


图 2 (a)马奔跑瞬间的拍摄; (b) ZDF-20 型转镜式高速相机光路图^[1]

像。而随着光电子技术的发展,电荷耦合器件(CCD, Charge Coupled Device)、互补金属氧化物半导体(CMOS, Complementary Metal-Oxide-Semiconductor)等图像传感器替代了感光胶片,电子快门替代了机械快门,高速摄影技术不断取得突破。

然而,微观世界的分子、原子、电子等粒子的运动过程太快,机械或电子快门都无法提供足够短的曝光时间来看清这些过程。超快激光的出现为成像技术提供了光快门,人类目前所能达到的最高时间分辨能力正是由超快激光的脉冲宽度所决定。超快激光在时间上表现为一系列持续时间极短的电磁脉冲。通过求解电磁波动方程可知,单一频率的光(单色光)为在空间、时间上无限延伸的正/余弦波,如图3所示。因此,超快激光必然是多种波长的光的叠加,在频谱上表现为多个成分。通过将多个等间距频率的光进行叠加,就可以得到周期排列的脉冲串,而对于不具有空间周期的单个脉冲,其

频谱为连续谱。要实现比较强的激光脉冲信号,需要确保不同波长的光在同一时空点达到峰值,即拥有相同的相位。随着对激光深入的理解,经过调Q及锁模技术的发展,激光所能产生的脉冲宽度已从纳秒、皮秒到了飞秒量级。进入21世纪后,随着钛宝石激光器、光纤激光器和其他新型激光器的发展,飞秒脉冲激光变得更加高效和可控。此外,超短光脉冲的时间-频率之间满足一个重要的关系(通常称为不确定性原理):脉冲的时间宽度与频谱宽度(带宽)的乘积大于一个定值。因此,针对已经达到傅立叶极限的短脉冲,若想进一步压缩脉宽,就需要增加其光谱带宽。这一思想衍生出了一系列展宽压缩技术与光波形合成技术,可以将激光脉冲宽度进一步压缩到几个飞秒。但是受限于激光中心波长及光谱宽度,在光谱覆盖可见及近红外波段且色散得到完全补偿的理想条件下,传统的锁模及脉冲压缩技术所能实现的脉冲宽度理论上也只能达到

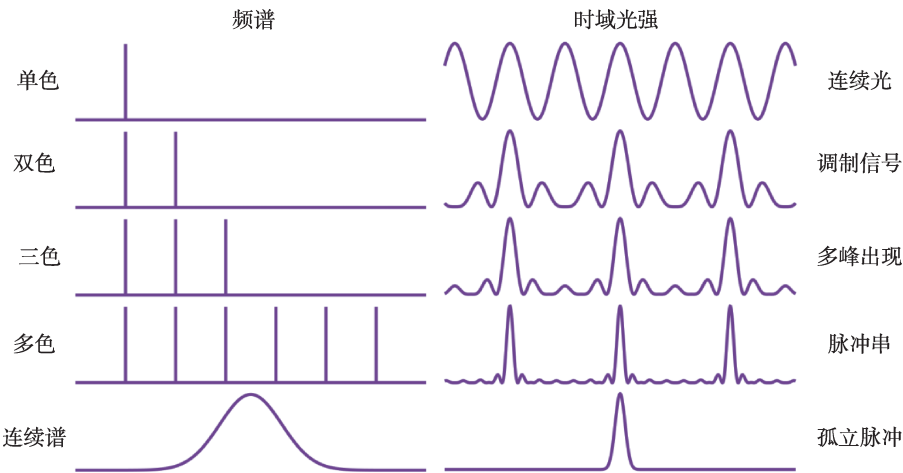


图 3 光脉冲的时间-频率关系

亚飞秒量级。想要获得更短的脉冲,需要借助更加前沿的方法,即阿秒脉冲产生技术,将波长拓展到极紫外甚至是软X射线波段并实现更宽的光谱。

阿秒脉冲的产生主要依赖于高强度飞秒激光与原子或分子相互作用中发生的高次谐波产生(HHG, High Harmonics Generation)过程^[2]。根据三步模型,当一束强激光照射到气体靶上时,电子会被电离并加速,再与原离子复合,从而释放出能量较高的光子,形成一系列频率为入射光奇数倍的谐波,如图4所示。这些谐波在频谱上表现为一系列等间距的梳齿,如图3多色频谱所示,它在时间上表现为一系列的阿秒脉冲串。在HHG过程中,通过精确控制激光参数,如强度、波长和脉冲形状等,可以有效地选择和增强特定脉冲,从而获得具有极高时间分辨率的孤立阿秒脉冲。孤立阿秒脉冲的光谱表现连续谱,为图3最后一种情况。

阿秒脉冲已是人类目前所能产生的最短脉冲,利用阿秒脉冲人们可以捕捉原子内电子的超快运动,这不仅有助于深化对物质基本性质及其相互作用的理解,同时也将促进相关应用技术的发展。2023年诺贝尔物理学奖授予皮埃尔·阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)、费伦茨·克劳斯(Ferenc Krausz)和安妮·吕利耶(Anne L'Huillier)三位科学家,以表彰他们在“产生阿秒光脉冲以研究物质中电子动力学的实验方法”所做出的贡献,这是阿秒研究领域的一项重要里程碑。为支持前沿阿秒科学与技术的发展,

世界各地的研究机构纷纷建立了阿秒激光设施,例如位于匈牙利的极端光设施(ELI, Extreme Light Infrastructure)的阿秒光源(ALPS, Attosecond Light Pulse Source)项目。在我国,先进阿秒激光设施也已经启动建设,将成为最尖端的综合性超快电子动力学研究设施之一。

目前,阿秒脉冲的应用研究主要围绕超快测量,如通过瞬态吸收光谱的变化揭示物质内部动态过程的阿秒瞬态吸收光谱(ATAS, Attosecond Transient Absorption Spectroscopy),通过测量光电子动能和动量得到电子能带结构和动态行为的阿秒角分辨光电子能谱(atto-ARPES, Attosecond Angle Resolved Photoemission Spectroscopy)等。但是由于缺少空间分辨能力,当遇到更庞大复杂的系统时,这些测量手段难以判别不同成分对实验信号的贡献,进而难以给出精确的结果。因此,开展适用于阿秒光源的成像方法和技术的创新研究,发展基于阿秒光源的超高时空分辨成像便起到了不可替代的重要作用。另外,软X射线阿秒脉冲可以覆盖“水窗”波段(波长约2.3至4.4纳米之间),在此波段水对阿秒脉冲的吸收较小,而组成生物大分子的碳、氮等元素则具有较高的吸收率,因此非常适合用于活体细胞和组织的高对比度成像,在生物医学成像方面具有巨大的应用前景。值得一提的是,阿秒成像已成为了近年阿秒科学与技术研究领域的前沿和热点,但阿秒成像的实现仍然面临着巨大挑战^[3],还有很长的路程要走。

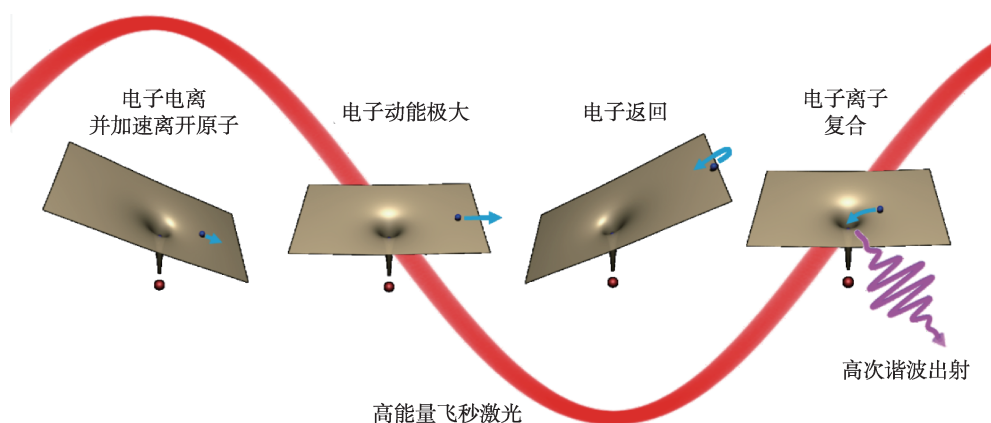


图4 气体高次谐波产生原理

2. 阿秒成像

2.1 传统成像的局限

现有的成像方案主要分为传统成像和衍射成像(或计算成像)。其中,传统成像在实现上较为直接,是日常生活中常用的成像方法,如手机、相机的镜头等,多数通过透镜/透镜组实现,可以直接在探测器面上采集到目标的实像。

但是传统成像在一些成像情景下会受到诸多限制。例如,在对一些透明的样品(如生物组织)进行成像时,由于样品对光的吸收较弱,传统的成像方法只能提供光强的变化,因此对比度较差,在许多情况下需要对样品进行染色。其次,在一些特殊的波段,传统的透镜将不再适用,光的聚焦会变得非常困难。在阿秒脉冲所处的极紫外和软X射线波段,大部分材料对这个波段的光都有强烈的吸收,因此多数会采用反射式的聚焦方案,如双曲面镜、Wolter镜等,如图5(a)所示。通常由于掠入射、焦距较长、口径受限、像差较大等问题,成像质量会难以把控。透射式的聚焦方案则一般使用菲涅耳波带片,如图5(b)所示,这类器件的效率较低且会产生大量的色差,与阿秒光源的适配性较差。在这些成像情景下,无透镜的衍射成像方法成为了一种较为理想的替代方案。

2.2 相干衍射成像

光的干涉和衍射本质上都是基于光的波动性产生的现象。当两束或两束以上振动方向、频率相

同,相位差稳定的光波在一个区域相遇时会相干叠加,即干涉现象。此时该区域内某些点振动增强,某些点振动减弱,从而形成稳定亮暗交替空间分布,如图6(a)为双缝产生的干涉图案。干涉条纹中包含了两个光束的夹角、波长、相位差等信息,因此延伸出了如测量薄膜楔角、折射率、照明光波长、厚度或微小厚度变化等多种应用。当光波穿过狭缝、小孔等障碍物时,在观察屏上看到的图样在边界处产生明暗相间条纹,即衍射现象。基于惠更斯和惠更斯-菲涅耳原理,当光波经过狭缝或小孔时,可以近似看作无数个点光源,衍射图案则是这些点光源叠加的效果。当处于傍轴近似的条件下时(衍射距离满足夫琅和费衍射条件)得到的夫琅和费衍射积分式,可用来描述远场衍射时观察平面上的光场复振幅,其与物面存在着傅里叶变换关系。如图6(b)所示为圆孔的夫琅和费衍射图,可以直接通过对圆孔函数做二维傅里叶变换得到。

相干衍射成像(CDI, Coherent Diffractive Imaging)^[4]是一种不依赖透镜的计算成像技术,通过感光元件CCD或CMOS等直接记录物体的衍射图,然后进行反演计算得到物像。探测器采集的衍射图案虽仅记录了光场的强度信息,但是当对衍射图每个方向的采样率大于二时,光场的相位信息也会隐含在衍射图中。此时,可以通过后续迭代相位恢复算法恢复出光场的相位信息,实现样品图像反演。该成像系统无需引入额外的参考光与成像透镜,成像系统精简,成像精度也不受到透镜数值孔径的限制,可以实现高分辨的相位成像。

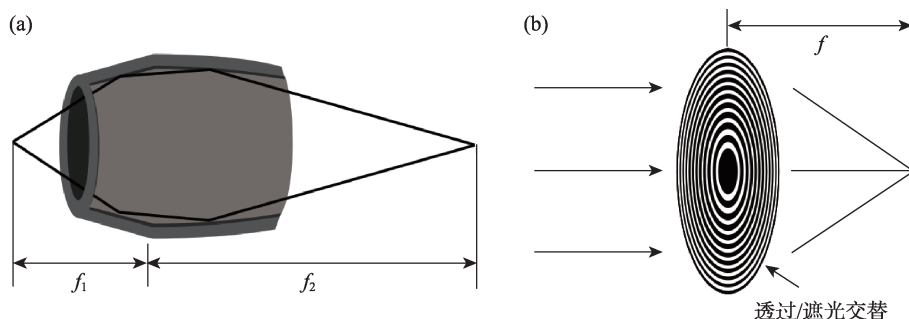


图5 短波段聚焦方法 (a)Wolter镜; (b)菲涅耳波带片

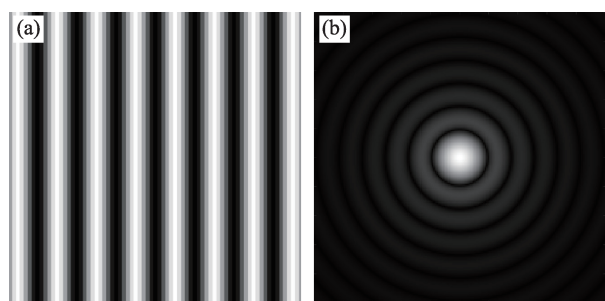


图6 (a) 双缝干涉图; (b) 圆孔夫琅禾费衍射图

相位恢复算法是CDI的核心,其最早源于Gerchberg和Saxton所提出的GS迭代算法^[9],其通过样品的振幅信息恢复出样品的相位信息,如图7所示。具体过程包括:(1)通过猜测一个相位值得到样本平面的复振幅估计值 t_n , (2)对其进行傅里叶变换,得到输出平面的复振幅值 T_n , (3)用记录的真实振幅替代 T_n 的振幅,相位保持不变,得到 T'_n , (4)对 T'_n 进行逆傅里叶变换,得到输入平面的复振幅 t'_n , (5)通过计算样本平面真实振幅和 t'_n 振幅的均方差来进行收敛状态评估,如满足条件则输出,未满足条件则进行下一次循环。GS算法简单易行,但缺点是收敛速度较慢,容易陷入局部最优值,得不到全局最优解,且需要已知样品平面的强度分布,因此在某些实际应用中会受到限制。随后,在GS算法的基础上又发展出了误差下降算法(ER, Error Reduction)和混合输入输出算法(HIO, Hybrid Input-Output)^[6-7]等方法,对约束条件或迭代输入方面进行了改进,扩展优化了算法的适用范围和收敛效率。

2.3 阿秒脉冲的衍射成像方法

虽然基于无透镜的衍射成像技术与处于极紫外和软X射线波段的阿秒脉冲的适配度更高,但是受不确定性原理约束,阿秒脉冲的超短脉宽对应着超宽的光谱(可跨越多个倍频程),相对带宽(光谱宽度与中心波长之比)可达100%以上^[8],这在衍射成像系统中同样会带来大量的色差,使成像变得极其困难。虽然叠层成像^[9]以及光谱成像^[10]方法可以实现宽带复色光的衍射成像,但是这些成像方式需要通过大量的扫描来实现,成像时间长且要求样品在

成像时间内不发生变化,难以实现高时间分辨,也难以用于对动态样品的成像。

多数情况下,探测器无法区分不同波长的光,因此在使用阿秒光源等宽谱光源进行衍射成像时,所采集到的衍射图均为各波长成分的单色衍射图的叠加,如图8所示。在传统的成像系统中,色差会造成图像模糊、成像质量差等问题,但是这些低质量的成像在应用中仍然会有一定的参考价值,也有可能通过后期的处理实现高质量图片的重现。相比之下,衍射成像对衍射图的质量要求非常高,色差和噪声都有可能导致反演的失败,因此直接使用如图8所示的高度模糊的衍射图来进行反演是非常困难的。

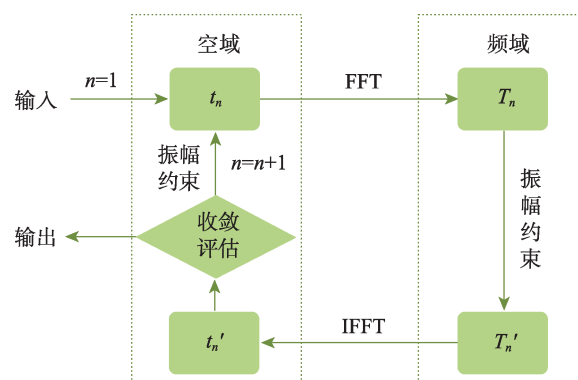


图7 GS相位恢复算法流程图

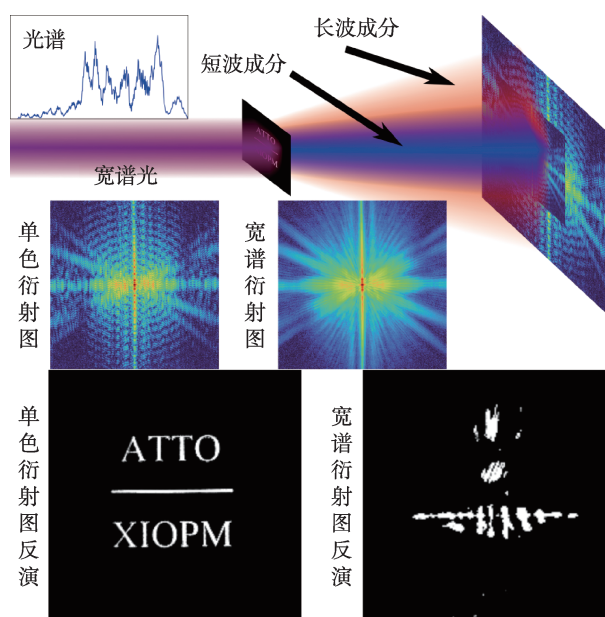


图8 宽谱和单色光产生的衍射图与反演结果对比

要实现单发式的阿秒成像,目前一种可行的方法是先将不同波长的光进行解耦,得到单色光的衍射图,之后再行衍射成像的图像恢复。根据远场衍射理论,对同一样品结构、同一衍射系统下,不同波长的光具有相同的衍射图案,但是其图案的大小不同。因此,对于一些没有色散的样品,对其单色的衍射图进行缩放叠加便可得到宽谱的衍射图^[11]。但是,在离散的图片中,插值方法并不能很好地处理缩放过程,主要会面临三个问题:(1)插值近似会降低衍射图的准确度,(2)放大时需要衍射图做超分辨,(3)缩小时图像边缘未知。为解决这些问题,基于傅里叶变换的图样重映射^[12](FTM, Fourier Transformation based pattern Mapping)方法被提出,可以实现单色衍射图在不同波长下的无损变换,如图9所示。

利用FTM变换关系便可以构建单色衍射图和宽谱衍射图的映射关系。FTM是线性变换,其线性叠加也是线性的,因此上述映射关系可以用矩阵乘法表示出来:

$$A\mathbf{m} = \mathbf{b}$$

式中 $\mathbf{m}$ 为单色衍射图, $\mathbf{b}$ 为采集到的宽谱衍射图, A 为FTM变换的线性叠加。因此单色衍射图的提取实则为线性方程的求解问题。但是,矩阵 A 非常庞大,例如对 300×300 的小图来说,这个矩阵就含有81亿个元素,而且该矩阵是稠密的,难以存到计算机内存中,导致传统的矩阵求解程序无法适用。相比之下,基于FTM的梯度单色化方法^[12](GM, Gradient Monochromatization)并不关注矩阵 A 的显式表示,而是利用迭代的方式,不断地对图片进行FTM

变换来实现求解,因此其占用内存小,同时支持显卡并行计算,具有非常高的运算效率,可以实现秒级的单色衍射图求解。在求解过程中宽谱衍射图的微小噪声会被放大,使得恢复出的单色衍射图质量很差,可以通过在迭代过程中要求单色衍射图的所有像素的值都为正,来降低噪声的影响并保证了迭代算法的稳定性。图10所示为基于GM-FTM方法所实现的高质量超宽光谱相干衍射成像。通过对比可以发现,这种单色化得到的衍射图可以很好地还原衍射图案的细节信息,与直接使用单色光源采集到的衍射图(图8)高度相似,因此通过图像反演算法便可高质量还原样品的像。另外,模拟表明这种方法在相对光谱带宽达140%时仍然有效,同时支持分立光谱的单色化,从而可以支撑阿秒孤立脉冲与高次谐波进行相干衍射成像。

但是现有的方法仍然具有一定的局限性,只能用于对一些特定的简单样品进行成像,如无色散的样品或单元薄样品等。对于更加复杂的体系来说,不同波长的光会有不同吸收与色散,其衍射图案也将发生变化,导致简单的缩放叠加前提失效。因此,为实现更加普适的阿秒成像,开发更加先进的光谱分辨衍射成像技术将是未来一个重要的研究方向。

3. 总结

阿秒脉冲的出现为超快动力学研究带来了新的机遇,照亮了通往物质内部电子世界的道路。阿秒脉冲除了可以提供极高的时间分辨,其相干性

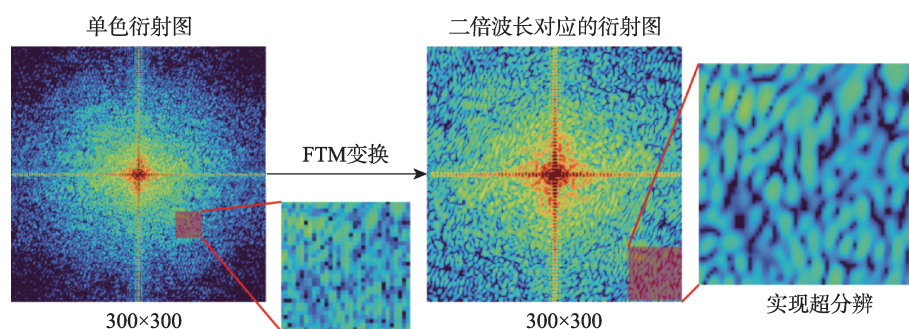


图9 单色衍射图的波长变换

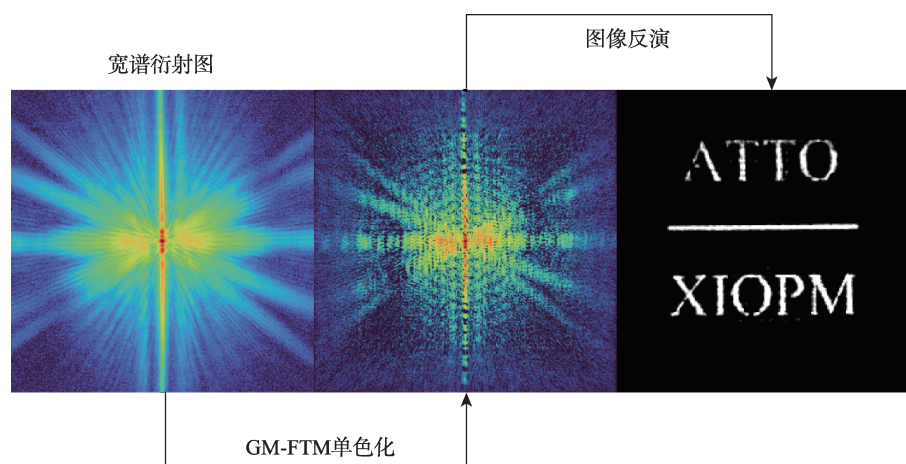


图10 超宽光谱相干衍射成像

好、波长短、可以高精度同步等特性也使其成为了一种理想的超高时空分辨成像的光源。但是阿秒脉冲固有的超宽光谱以及极紫外和软X射线波段高质量光学元件的缺乏等都给阿秒成像带来了困难。目前,阿秒成像已成阿秒科学与技术领域的研究前沿和热点,针对阿秒成像中存在的难点问题,国内外多个研究机构,如美国加州大学洛杉矶分校、法国巴黎综合理工学院、澳大利亚墨尔本大学、德国亥姆霍兹实验室、日本理化所先进光子学研究中心、中国科学院西安光学精密机械研究所、华中科技大学、山东大学等已开展了相关的研究。基于衍射图样单色化以及叠层扫描等方法的宽光谱成像技术已被提出,科学家们已可以实现带宽超过100%的超宽光谱的单发式相干衍射成像,为实现阿秒超高时空分辨成像奠定了基础。然而阿秒成像研究仍处于起步阶段,现有的成像方法在面对复杂样品时具有一定的局限性,时间分辨能力的实现也依赖于泵浦探测技术。如何进一步实现超高时空分辨成像技术的突破,孕育新的成像理论和方法,发展新的成像器件和材料,加强同人工智能、压缩感知等各类方法的结合,实现跨领域、跨学科交叉应用研究,都是阿秒成像领域正面临的挑战和机遇。

参考文献

- [1] 李景镇, 转镜式超高速成像技术进展(特邀), 光子学报 51, 0751402 (2022).
- [2] 王虎山, 曹华保, 皮良文, 黄沛, 王向林, 徐鹏, 袁浩, 刘鑫, 王屹山, 赵卫, 付玉喜, 阿秒脉冲产生和测量技术研究进展(特邀), 光子学报 50, 0132001 (2021).
- [3] 李博洋, 王虎山, 付玉喜, 高次谐波与阿秒脉冲在成像中的应用与前景(特邀), 光学学报 44, 1732003 (2024).
- [4] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre, Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens, *Nature* 400, 342 (1999).
- [5] J. Miao, D. Sayre, and H. N. Chapman, Phase retrieval from the magnitude of the Fourier transforms of nonperiodic objects, *JOSA A* 15, 1662 (1998).
- [6] J. R. Fienup, Reconstruction of an object from the modulus of its Fourier transform, *Opt. Lett.* 3, 27 (1978).
- [7] J. R. Fienup, Phase retrieval algorithms: a comparison. *Appl. Opt.* 21, 2758 (1982).
- [8] J. Li, X. Ren, Y. Yin, et al., 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge, *Nat. Commun.* 8, 794 (2017).
- [9] A. Rana, J. Zhang, M. Pham, A. Yuan, Y. H. Lo, H. Jiang, S. J. Osher, and J. Miao, Potential of Attosecond Coherent Diffractive Imaging, *Phys. Rev. Lett.* 125, 086101 (2020).
- [10] S. Witte, V. T. Tenner, D. W. Noom, and K. S. Eikema, Lensless diffractive imaging with ultra-broadband table-top sources: from infrared to extreme-ultraviolet wavelengths, *Light Sci. Appl.* 3, e163 (2014).
- [11] J. Huijts, S. Fernandez, D. Gauthier, M. Kholodtsova, A. Maghraoui, K. Medjoubi, A. Somogyi, W. Boutu, and H. Merdji, Broadband coherent diffractive imaging, *Nat. Photon.* 14, 618 (2020).
- [12] B. Li, Z. Xiao, H. Yuan, P. Huang, H. Cao, H. Wang, W. Zhao, and Y. Fu, Snapshot coherent diffraction imaging across ultra-broadband spectra, *Photon. Res.* 12, 2068 (2024).