

# 阿秒光脉冲技术的发展和應用

张志刚<sup>†</sup>

(北京大学电子学院 北京 100871)

2023-11-21 收到

<sup>†</sup> email: zhgzhang@pku.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20231203

## Development and potential applications of attosecond optical pulse technology

ZHANG Zhi-Gang<sup>†</sup>

(School of Electronics, Peking University, Beijing 100871, China)

**摘要** 阿秒光脉冲的产生方法获得2023年诺贝尔物理学奖,引起了人们的广泛兴趣。阿秒脉冲是通过周期量级的飞秒脉冲产生高次谐波得到的,其中需要许多关键技术,包括飞秒脉冲压缩技术、脉冲载波相位的稳定控制以及脉冲强度的提高。文章简要介绍阿秒脉冲的产生方法,及其发展趋势和应用。

**关键词** 阿秒脉冲, 高次谐波, 周期量级脉冲, 载波包络位相

**Abstract** The 2023 Nobel Prize in Physics, awarded for attosecond optical pulse generation, has attracted much attention. Attosecond pulse generation is realized through the creation of high harmonics with femtosecond laser pulses, and requires several key technologies, including femtosecond pulse compression, carrier-envelope-phase control, and pulse intensification. This article briefly reviews the generation, future development, and various applications of attosecond pulses.

**Keywords** attosecond pulse, high harmonics, few cycle pulses, carrier-envelope-phase

2023年诺奖物理学奖公布,呼声已久的阿秒脉冲产生的实验方法终于获奖。

5年前的2018年,诺贝尔物理学奖给了Gerard Mourou和他的学生。奖励的是飞秒脉冲啁啾放大技术。正是由于啁啾脉冲放大技术,人们才可以获得驱动高次谐波产生阿秒脉冲的高能量飞秒脉冲;而追溯到2005年的诺贝尔物理学奖,其中光频梳技术中的脉冲包络位相控制技术,恰恰是获得孤立的阿秒脉冲的关键。

## 1 阿秒脉冲产生条件

产生阿秒脉冲的条件和飞秒一样,首先要有足够宽的光谱来支持这样短的脉冲。根据时间带

宽积( $\Delta\nu\Delta t \geq 1$ ),脉冲宽度和光谱宽度成反比,即脉冲越短,需要的光谱宽度就越宽。要得到小于1 fs的阿秒脉冲,就要有大于 $10^{15}$  Hz的带宽。同时,载波就要更高的频率。

从脉冲载波的周期看,脉冲的宽度不能小于一个光载波的振荡周期。光的振荡周期为1 fs时,频率是 $10^{15}$  Hz,对应波长是300 nm。因此要打破飞秒壁垒,就需要将波长缩短到紫外或X射线波段。

常规的激光介质显然不满足这个条件。首先,固体激光介质工作波长在可见光至红外波长,单纯从一个激光介质中产生的激光谱宽,例如钛宝石,只能支持5 fs量级的脉冲。即使是整个可见光域的光谱,也只能支持3 fs脉冲。对于气体激

光器，例如准分子，虽然在紫外波段，但光谱带宽没有宽到支持阿秒的程度。

既然现有的激光介质不能支持阿秒脉冲，那只能用腔外扩谱的方法。至少有两种方法可以大幅扩大光谱范围。一种是级联拉曼，一种是高次谐波。这两种光学谐波产生方法都会有非常宽的跨波段的多级光谱。它们的合成是否能够获得阿秒脉冲呢？

级联拉曼是在氢气(及其同位素)中利用分子振动频率的级联产生的一系列光谱，这些光谱间隔相同，并可以扩展到紫外光。例如在氙气体中

可以获得带宽为2.3 PHz的多级拉曼光谱。很可惜，在这些拉曼分量之间，没有证据表明存在固定的位相差，因此很难合成一个脉冲。有人曾声称得到了200—700 as的脉冲，脉冲间隔为94 fs。但问题是，没有证据表明这些分立的光谱有固定的位相关系。

产生高次谐波的原理，如图1所示，一般采用三步模型来解释：电离、加速、复合。强光脉冲电离原子，电子在光场中加速获得能量，在复合过程中，电子会以更短波长光脉冲的形式释放出它所获得的动能，这个在软X射线波段的辐射就是高次谐波。

并非只有飞秒脉冲才能产生高次谐波，只要峰值功率足够高，就能产生一系列等间隔的奇次谐波，只不过是截止频率高低的问题。虽然有人声称用高次谐波合成并测出了阿秒脉冲，但仔细一看，其实只是做了线性自相关，即测量的是光谱相干时间，而不是脉宽。

## 2 阿秒脉冲就在每个谐波里

吕利耶(Anne L'Huilier)的贡献是，早在1980年代后期她就发现，其实不用把那些谐波合成起来做阿秒，每个谐波本身就是阿秒<sup>[1, 2]</sup>。

阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)用双光子电离互相关法或称RABBITT(reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions)法测出了高次谐波脉冲电场的幅度和位相，重建出脉冲的时域波形，从而得出平均脉宽为250 as，脉冲间隔为1.35 fs(图2)<sup>[2]</sup>。

但是这些谐波阿秒脉冲的时间间隔非常近，没有找到一个高速光开关，可以把其中一个阿秒脉冲分离出来。

## 3 截止频率附近的超连续谱

早在1996年，Margret Murnane等人就发现<sup>[4]</sup>，当激发高次谐波的脉冲不断缩短时，高次谐波的谱宽不断增加。当脉冲缩短到周期量级时，截止频率附近的高次谐波竟然连成了一片，形成一个

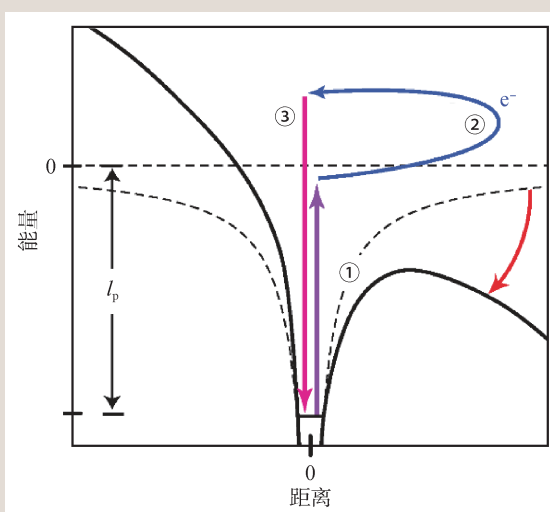


图1 高次谐波产生原理的三步模型示意图：①电离；②加速；③复合

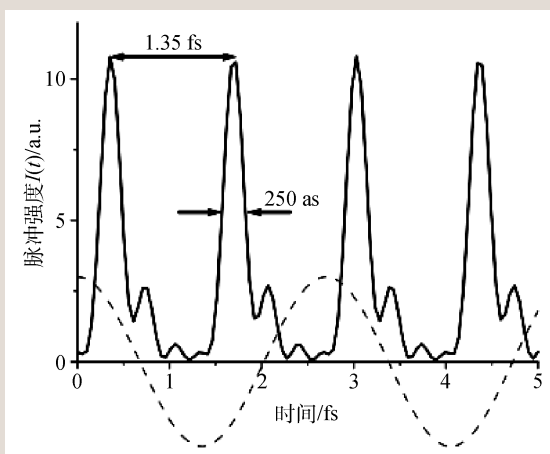


图2 Agostini等用RABBITT法测出的从第11次到第19次5个谐波的电场幅度和位相，然后重建的脉冲时域波形。每个峰的半高宽是250 as，间隔是1.35 fs。余弦函数波形(虚线)代表零延迟时红外探针电场<sup>[3]</sup>

小的超连续谱。如图3所示，当脉冲从30 fs缩短到7 fs (相对于波长800 nm时的2.6个光学周期)时，高次谐波的波形连成了一片。

克劳斯(Ferenc Krausz)小组进一步证明<sup>[5]</sup>，只有当周期量级脉冲的载波包络位相等于0时，截止频率附近的光谱才会连成一片(图4)。在截止频率附近的好处是，可以用光谱滤波的方法把截止频率以后这个小的超连续谱分离出来。这就是所谓“孤立”(isolated)的阿秒脉冲。

把脉冲缩短到单周期，在当时已经不太困难。当棱镜压缩脉冲到了极限时，维也纳工业大学的Krausz和他的同胞、在匈牙利物理所工作的Robert Szipocs一起提出，用一种所谓的啁啾反射镜来补偿激光器腔内色散，其中Szipocs负责镀膜。用这个的啁啾镜，Krausz最终得到了5 fs左右，也就是准单周期脉冲。用啁啾镜技术做激光腔内的色散补偿，甚至激光腔外的色散补偿，是迈向单周期脉冲很重要的一步。啁啾镜，至今仍是非常重要的色散补偿元件。

从激光振荡器出来的脉冲虽然达到了周期量级，但脉冲能量只有1 nJ左右。这样低的脉冲能量不足以激发高次谐波。好在啁啾脉冲放大技术已经是常规技术，可以将脉冲放大，提高到毫焦量级。然而由于增益窄化和剩余色散，放大后的脉冲只能压缩到30 fs。

米兰工业大学的Nisoli等人发现，惰性气体的电离可以突破增益介质对脉冲光谱的限制。他们提出，用充有惰性气体的直径100 μm左右的空芯光纤来扩谱。几十厘米长的空芯光纤，既可以保持单横模光斑，色散又小，可以用啁啾镜压缩。他们最终得到几百微焦的脉冲能量，而且还是准单周期脉冲<sup>[6]</sup>。

但是，如何把脉冲的载波包络位相控制在零呢？

#### 4 载波包络位相控制和光频梳

当脉冲缩短到周期量级，也就是在脉冲的包络之下，只有一个载波周期时，载波和包络的峰

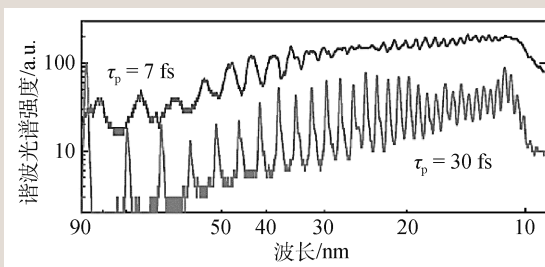


图3 不同脉冲宽度的激光入射到氖气中产生的高次谐波<sup>[3, 4]</sup>

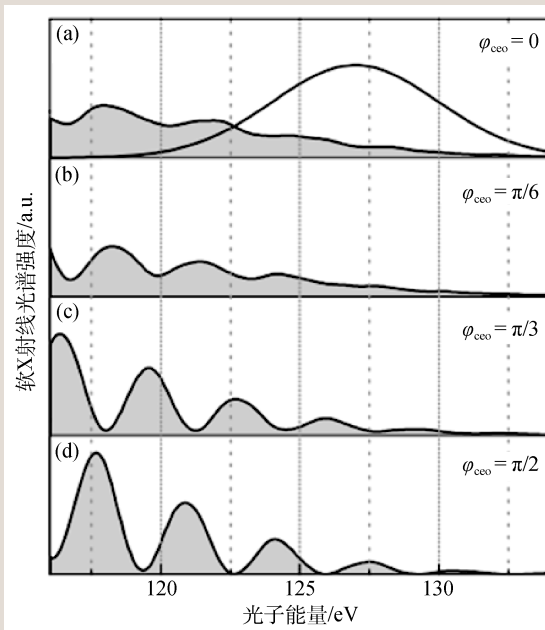


图4 在周期量级脉冲激发的高次谐波软X射线光谱的数值模拟中，(a—d)中下方有阴影的曲线是截止频率区内，高次谐波辐射谱随载波包络位相的变化<sup>[5]</sup>。其中，(a)中显示载波包络位相( $\varphi_{\text{ceo}}$ )为0时，截止频率区的高次谐波连成一片，另一条曲线是高斯型滤波器滤出的连续谱

值是否对应，就显得非常重要。因为在这样短的脉冲中，是脉冲的电场，而不是包络在发挥作用。脉冲的强弱取决于这两个峰重合是否一致。只有这两个峰值重合，才能得到最强的电场。

在载波包络位相的示意图中(图5(a))， $\varphi_{\text{ceo}}$ 是载波一包络位相差，它取决于激光器腔内色散导致的群速度和相速度的不同。这样小的位相差，在载波的一个周期之内，很难进行时域测量。

提出测量 $\varphi_{\text{ceo}}$ 方法的是瑞士联邦工业大学的Ursula Keller<sup>[7]</sup>。她领导的小组用傅里叶变换，导出了 $\varphi_{\text{ceo}}$ 和初始频率的关系，并命名为 $f_{\text{ceo}}$ 。 $f_{\text{ceo}}$ 在

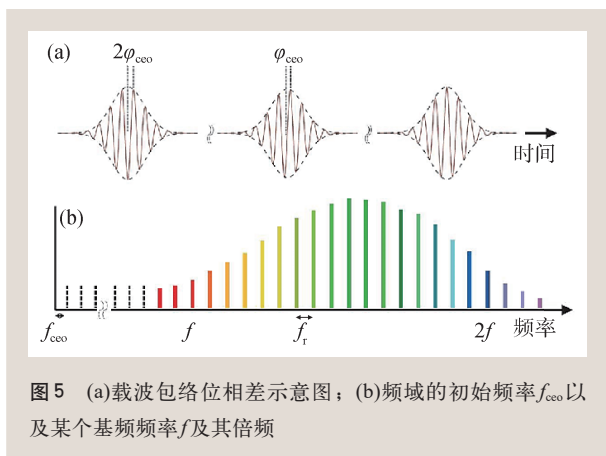


图5 (a)载波包络位相差示意图；(b)频域的初始频率 $f_{\text{cco}}$ 以及某个基频频率 $f$ 及其倍频

MHz 量级，可以很方便地在频域测量出来，并发明了基频—倍频—拍频法 ( $f$ -to- $2f$ ) 来测量  $f_{\text{cco}}$ 。而这个方法，也为光频梳的形成提供了关键技术。

图5(b)显示了这种方法。在超过倍频程的光谱中，每个频率都是一个频率间隔 $f$ 的整数倍加上一个初始频率 $f_{\text{cco}}$ 。当某个光频率被非线性晶体倍频时，会含有两个 $f_{\text{cco}}$ ，而光谱中原有的2倍于这个基频附近的频率中，只含一个 $f_{\text{cco}}$ 。这两个频率的拍频，就是 $f_{\text{cco}}$ 。

在各种技术的铺垫下，2001年，Krausz等人做出了650 as孤立的阿秒脉冲<sup>[8]</sup>。目前最短的脉冲在43—53 as范围内<sup>[9, 10]</sup>。

## 5 阿秒脉冲驱动光源的演变

2010年前后，阿秒脉冲的研究发生了很大变化<sup>[11]</sup>。2010年以前，钛宝石激光器是标准和成熟的阿秒脉冲驱动光源。其脉冲能量在数十毫焦、重复频率在1 kHz以内。因为波长较短，截止频率被限制在100 eV左右。同时，重复频率相对低，限制了它产生阿秒脉冲的平均功率。

2010年后，人们将有利于提高截止频率和重复频率的中红外光参量啁啾脉冲放大器(OPCPA)作为驱动光源的主要研究方向。但是，它会使得驱动波长变长，电子波束发散以及高次谐波级次增加，导致产生阿秒脉冲的效率急剧下降。

为了弥补效率的下降，人们把主要精力放在了驱动光源的强度和重复频率的增加。成熟的重

复频率100 kHz、平均功率超过1 kW的飞秒光纤或碟片激光器，加上多通腔扩谱和脉冲压缩技术，成为新的阿秒脉冲的驱动光源，这极大增加了阿秒脉冲的重复频率和平均功率。另一方面，自主控制驱动脉冲光场波形的光场合成技术也可以使阿秒激光产生的效率提高。

## 6 阿秒科学有光明的未来

由于驱动光源的长波长化，阿秒脉冲的光子能量向1 keV以上扩展，脉冲宽度也向原子单位时间24 as发展。这使阿秒脉冲的应用发生了很大变化。

(1) 伴随阿秒脉冲光子数的增加，单脉冲就能观察到纳米材料的纳米尺度的微小变化，使亚飞秒分辨率的超高速成像成为可能。

(2) 随着阿秒脉冲强度的增加，用超短脉冲的表面倍频和四波混频等非线性光学效应的多维成像技术，有可能向软X射线波段扩展。这对理解表面、界面的化学反应、催化机理等有着非常重要的作用。

(3) 随着截止波长的扩展，如果能实现吸收端附近的X射线吸收微细结构和宽带X射线吸收的微细结构同时测量，就能用单一阿秒光源连续测量电子动力学和结构变化。光诱导的相变、结构变化等固体物理学中经久不衰的课题将有了新的研究手段。

(4) 随着截止波长的扩展，在光化学和生命科学领域，利用阿秒脉冲可研究更大的分子。特别是，随着水窗波长的光子数增加，水环境下近自然状态中，可以捕捉DNA和蛋白质生物分子的变化，将有助于理解光诱导反应动力学并发展控制手段。

与此同时，圆偏光和具有轨道角动量的涡旋光的阿秒脉冲也在进行中，可能对手性分子、磁性材料的研究有重要作用。特别是，如果能做出亚keV能量的圆偏光，可加速磁性材料特别是超高速磁性器件的研究和开发。

目前，欧洲先进的阿秒光源ELI-ALPS

(Extreme Light Infrastructure Attosecond Light Pulse Source)已开始运转。2013年,中国科学院物理研究所实现了160 as孤立阿秒脉冲测量实验<sup>[12]</sup>。中国科学院西安光学精密机械研究所自主研制了高能分辨阿秒条纹相机,产生和测量了159 as的孤立阿秒脉冲<sup>[13]</sup>。国防科技大学2020年报道了88 as孤立阿秒脉冲的实验结果<sup>[14]</sup>。华中科技大

学、中国科学院上海光学精密机械研究所、中国科学院近代物理研究所,以及中国工程物理研究院、北京应用物理与计算数学研究所等研究单位也开展了大量阿秒物理的实验和理论研究,有些建成了阿秒研究基地或平台。这些基地或平台,不仅能产生阿秒光脉冲,也可为更广阔的应用领域提供服务。

## 参考文献

- [1] Li X F, L' Huillier A, Ferray M *et al.* Phys. Rev. A, 1989, 39: 5751
- [2] Antoine P, L' Huillier A, Lewenstein M. Phys. Rev. Lett., 1996, 77: 1234
- [3] Paul P M, Toma E S, Breger P *et al.* Science, 2001, 292: 1689
- [4] Christov I P *et al.* Phys. Rev. Lett., 1997, 78: 1251
- [5] Baltuska A, Udem Th, Uiberacker M *et al.* Nature, 2003, 421: 611
- [6] Nisoli M, Silvestri S D, Svelto O *et al.* Opt. Lett., 1997, 22: 522
- [7] Telle H R *et al.* Appl. Phys. B, 1999, 69: 327
- [8] Hentschel M *et al.* Nature, 2001, 414: 509
- [9] Gaumnitz T *et al.* Opt. Exp., 2017, 25: 27506
- [10] Li J *et al.* Nat. Commun., 2022, 16: 267
- [11] Midorikawa K. Nat. Photon., 2022, 16: 267
- [12] Zhan M, Ye P, Teng H *et al.* Chin. Phys. Lett., 2013, 30: 093201
- [13] Wang X, Xu P, Li J *et al.* Chin. J. Lasers, 2020, 47: 0415002
- [14] Wang X, Wang L, Xiao F *et al.* Chin. Phys. Lett., 2020, 37: 023201



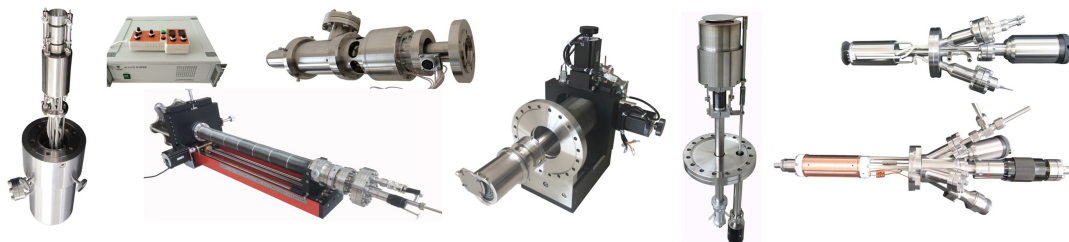
## 大连齐维科技发展有限公司

地址: 大连高新园区龙头工业园龙天路27号

电话: 0411-8628-6788 传真: 0411-8628-5677

E-mail: [info@chi-vac.com](mailto:info@chi-vac.com) HP: <http://www.chi-vac.com>

表面处理 and 薄膜生长产品: 氩离子枪、RHEED、磁控溅射靶、束源炉、电子轰击蒸发源、样品台。



超高真空腔室和薄膜生长设备: PLD系统、磁控溅射系统、分子束外延系统、热蒸发镀膜装置。

