

阿秒激光脉冲的新进展*

韩海年 魏志义[†] 苍宇 张杰

(中国科学院物理研究所 中国科学院光物理重点实验室 北京 100080)

摘要 文章概述了阿秒脉冲产生的基本原理及测量方法,并在此基础上对最近成功报道的产生单个阿秒脉冲的实验进行了详细介绍,指出了阿秒脉冲发展中需要解决的问题及今后的应用前景.

关键词 阿秒脉冲,高次谐波,互相关测量,载波-包络相位

Recent progress of attosecond laser pulses

HAN Hai-Nian WEI Zhi-Yi[†] CANG Yu ZHANG Jie

(Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract We review the basic principle and measurement of attosecond laser pulses. Recent progresses on the generation and measurement of single attosecond pulse are described. Finally, we analyse the problems that to be further resolved and prospect the future applications.

Key words attosecond pulse, high-order-harmonic, cross-correlation, carrier-envelope phase

1 引言

飞秒激光在最近十几年时间里的快速发展,为人类充分探索微观超快现象及研究强场物理提供了前所未有的实用手段和发展机遇.例如,利用它极短的持续时间($1\text{fs} \approx 10^{-15}\text{s}$),人们可以观察到极快的化学反应过程,包括分子键的断裂与重组,分子与原子的振动过程等等;利用它极高的峰值功率(聚焦后的强度可达到 $10^{21}\text{W}/\text{cm}^2$),人们可以开展极端条件下强场物理的研究,包括激光等离子体,X射线辐射源,热核反应快速点火等等.虽然迄今已在上述诸多领域取得了大量的研究成果,但人类探索自然无穷奥秘的热情驱动着科学家要找到比飞秒更短的闪光脉冲来帮助自己看到更快的反应过程.正如每位摄影师都知道的那样,一个“闪光”可以冻结一个动作,如果动作发生的时间越短,则需要冻结它的“闪光”就相应地要求越短,否则图像就会出现虚影.飞秒脉冲作为光探针,对于观察发生在飞秒时间量级的化学反应来说非常合适,可以很容易地记录到各

种分子与原子的动力学过程.1999年诺贝尔化学奖得主 Ahmed Zewail 教授就是利用飞秒激光抽运-探测技术成功地控制了化学键的成键与断裂,观察到了从反应物到生成物的中间过程,从而获此殊荣^[1].但是对于发生在阿秒量级($1\text{as} \approx 10^{-18}\text{s}$)的物理现象,如原子内电子的跃迁和弛豫过程,飞秒脉冲就显得无能为力了.为了研究阿秒时间量级的超快过程中所发生的瞬态现象,就需要探索产生阿秒脉冲的各种可能的技术和方法.

2 高次谐波的产生

回顾一下从皮秒到飞秒技术的发展过程,我们可以看到有这么几个条件是必要的:一是新型增益介质的出现.增益介质作为产生激光的三个必要条件之一,对于飞秒脉冲的产生来说还必须要求具有宽的增益带宽.根据傅里叶变换,增益带宽与持续时

* 国家自然科学基金(批准号 60225005, 10227401)资助项目
2003-04-17 收到初稿, 2003-06-20 修回

[†] 通讯联系人, E-mail: wzhy@aphy.iphys.ac.cn

间成反比,只有足够的增益带宽才能保证飞秒输出。目前这类通用的增益介质包括掺钛蓝宝石晶体(Ti:sapphire)、掺铬六氟铝酸锶锂晶体(Cr:LiSAF)、掺铬镁橄榄石晶体(Cr:forsterite)等。二是采用新的激光技术。飞秒脉冲产生利用的是新的锁模技术,其中克尔透镜锁模技术因为机制简单及操作方便已成为目前最常采用的飞秒激光脉冲产生技术。三是谐振腔镜的镀膜工艺及腔内色散补偿技术的发展。只有在宽带膜及有效的高阶色散补偿的保证下,才能得到10fs以下的超短脉冲。但是当飞秒脉冲要向更短的阿秒迈进时,这种产生飞秒的方法却不再适用。原因很简单,主要是受到光振荡周期的限制。众所周知,可见光的振荡周期大约是2fs,由于脉冲持续时间不可能短于一个光振荡周期,所以在可见光波段不可能产生短于飞秒的光脉冲,要想实现阿秒脉冲必须在高频区(如极紫外或软X射线区^[2])想办法。但是在高频区要想利用传统的光学谐振腔来产生紫外阿秒脉冲有如下困难:一是没有紫外区激光介质,二是缺乏在紫外区镀宽带膜的成熟技术。既然激光介质和谐振腔这两个激光产生必备的条件都不具备,人们只能另外想办法来产生更短的阿秒脉冲。

目前人们在产生阿秒脉冲的原理方法上作了大量的前沿探索工作^[3-9],其中最具有前途的方案是超短脉冲的谐波合成技术^[3]。具体的可行技术有两种:一种是利用超强超短脉冲与惰性气体的非线性效应产生高次谐波^[8],或者受激拉曼散射从而得到阿秒脉冲的方法;另一种是相位锁定光学参量或同步飞秒激光产生的可见光亚谐波合成技术^[10-11]。最近,前一种方法,即高次谐波产生阿秒脉冲技术有了突破性的进展。一个由奥地利维也纳技术大学、加拿大国家研究中心和德国比利斐尔德大学的研究人员组成的国际课题组,报道了他们产生的单个脉冲为650as的X射线脉冲^[12]。他们采用氙气作为非线性介质靶,用一束超高强度超短激光脉冲聚焦在靶上,从而获得了类似激光的X射线脉冲,并且利用新的测量技术第一次测出了此X射线脉冲的脉宽是650as。

对于这种方法的物理机制,1993年Paul Corkum给出了一个简单的模型^[13],这个模型可以很好地解释实验中高次谐波产生的一些物理性质。图1就是这个模型的简单图示解释^[14]。Paul认为,当超强超短激光脉冲与气体原子靶相互作用时,超强超短脉冲作为驱动光场,极大地改变了原子中电子的电离势曲线,结果使束缚电子可以穿透这个势垒发

生隧道电离,被电离出的自由电子在随后的光场中加速或减速,并与它脱离的离子或周围的离子碰撞。复合时发射出能量等于电离电位 W_b 与激光光波场中得到的动能之和的光子。图1中发射出的光子频率表示为 ω_{xuv} ,处于极紫外或软X射线区。由于这种基本过程与激光频率准周期性的叠加,从而产生了谐波。而电子是在光强最大(波峰或波谷)处被精确电离,同时辐射高次谐波,所以辐射是在极短的时间内产生,理论计算这个时间大约是100as。但是在一个光周期内有两次辐射,这样产生的光脉冲是一个阿秒串,即每半个光周期有一个阿秒脉冲,这种间隔如此紧密的脉冲串在绝大多数实验中都是无法使用的。可贵的是奥地利这个国际课题组同时也解决了这个难题,他们利用几个周期的强飞秒激光作为驱动激光,再使用一个高通滤波器,从数目较少的阿秒脉冲串中分离出了单个脉冲,从而为阿秒脉冲的实用化奠定了基础。图2为采用重元素Zr作为滤波器选取单个阿秒脉冲的实验原理图。

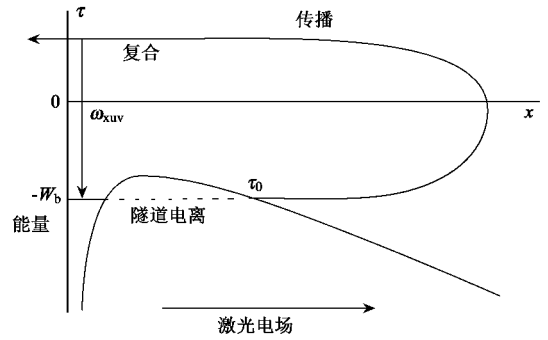


图1 高次谐波产生的 Paul Corkum 模型

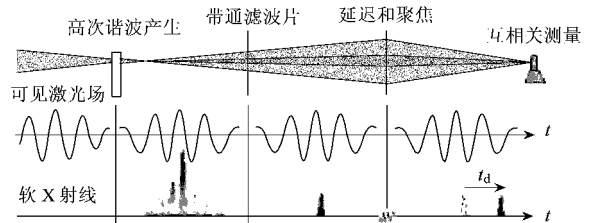


图2 单个阿秒脉冲产生与测量的实验原理图

3 互相关测量原理

早在1993年,当人们首次观察到超短脉冲与气体相互作用产生高次谐波时就已经知道其中蕴含着阿秒成分^[2],但一直苦于没有合适的办法进行测量。可以说阿秒脉冲测量带给人们的是比阿秒脉冲产生更大的挑战,从原理上讲,阿秒脉冲的测量也可以采用飞秒脉宽测量的自相关法^[15],这种方法是采

用两个相同的延迟脉冲先后通过倍频晶体发生自相关作用,通过测量产生的二次谐波,从而获得这个脉冲的时间特性参数.二次谐波自相关法在测量原理上非常简单,但是对于阿秒测量来说,实现起来有很多的障碍.最大的困难是极紫外或软 X 射线阿秒脉冲的强度都太低,无法在原子介质中产生可测量的非线性效应.1999 年, Papadogiannis 在这个概念上进行了重要的改进^[6],他们利用驱动激光脉冲来代替其中一个要测的高次谐波脉冲,这个想法来自于产生高次谐波的电离气体也可以作为非线性介质来测量脉冲宽度.由于用驱动激光代替了一个高次谐波脉冲,相当于可见激光脉冲与高次谐波的互相关作用,和自相关测量法相对应,这种方法实质上是一种互相关测量法^[16,17].这种测量高次谐波脉冲宽度的方法在实验上虽然简单,但在原理上却是非常复杂的,因为在这个过程中,产生和测量是同时发生、互相影响的,所以这种测量方法的物理机制和高次谐波的产生机制密切相关.

互相关测量阿秒脉冲的基本物理思想是,当一个极紫外或软 X 射线光脉冲射入非线性气体介质时,使介质原子发生光电离,所产生的光电子在产生时刻受到比 X 射线脉冲延迟了时间 t_d 的驱动激光脉冲光场作用,其动能发生改变,改变的大小取决于此时刻激光脉冲的振荡光场的振幅、载波频率和绝对相位.理论预言如果高次谐波光脉冲时间相对于半个驱动激光脉冲而言很短,则在平行于激光偏振方向的动量分量中将会加入一个改变量,结果导致在光电子动量的角度分布中动量质心在平行于激光偏振方向有上移或下移现象.如图 3 所示,这与光电子产生时刻激光电场的绝对相位有很大关系,这里所说的绝对相位也就是飞秒激光稳频控制中的载波-包络相位.当超短脉冲的持续时间只有几个光周期时,载波-包络相位对高次谐波的产生影响很大,图 4 表示载波-包络相位分别为 0 和 $\pi/2$ 时所获得的高次谐波的时间特性曲线,可以明显地看出,两个曲线的强度和脉宽都有很大差别.由于互相关的测量实际上也要用到驱动激光脉冲,所以载波-包络相位对于测量来说也有很大的影响.实际中如何通过控制它来产生高质量的阿秒脉冲已是目前国际上的一个研究热点.

4 单个阿秒脉冲的产生与测量

利用高次谐波产生单个亚飞秒的 X 射线脉冲技术以及上述介绍的互相关测量法,奥地利 Krauze

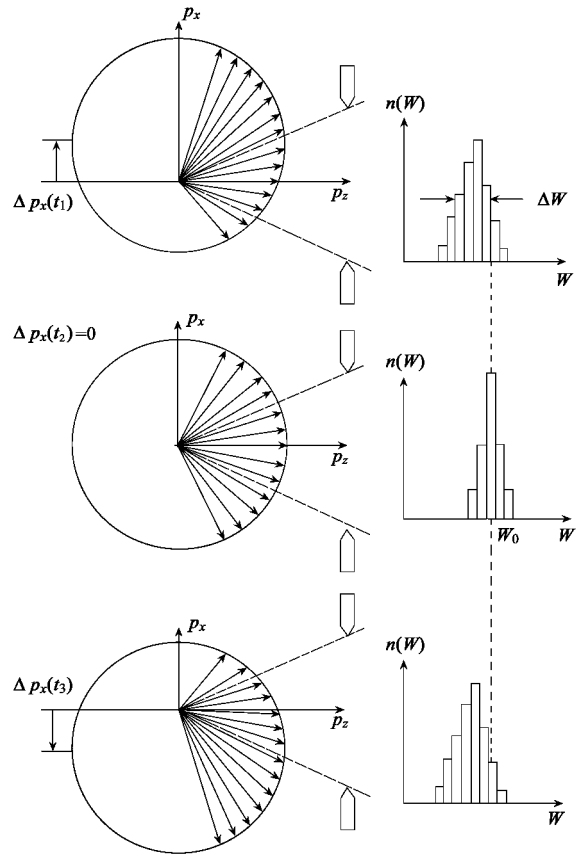


图 3 互相关测量原理图

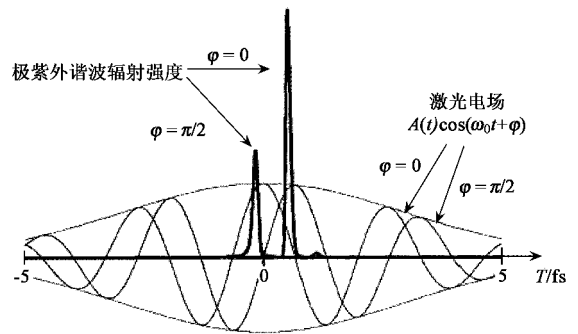


图 4 载波-包络相位分别为 0 和 $\pi/2$ 时产生的高次谐波

研究组于 2001 年成功地测得了脉宽 650as 的 X 射线高次谐波.这个实验为我们打开了一扇通往研究原子分子中电子的极端超快过程的大门.他们所采用的实验装置如图 5 所示,驱动激光场是聚焦强度为 $9 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、脉宽 7fs、中心波长 750nm、重复频率 1kHz 的超短激光脉冲,将其射入 3mm 长、200mbar 的氖气中,产生一串极紫外和软 X 射线谐波脉冲.然后将此 X 射线与共线的可见光驱动激光脉冲一起,通过一个金属锗组成的带通滤光片,进行单个阿秒脉冲的选取,产生了一个 90eV 的低发散

度谐波软 X 射线及一个环状可见光束,然后以钼硅反射镜聚焦和强化此软 X 射线脉冲,对于可见驱动激光又会产生延迟,最后以此可见延迟激光和软 X 射线共同辐照一氩原子气体靶,通过在垂直于激光偏振方向的小角度内探测产生光电子的能谱位移,从而获得 X 射线脉冲的持续时间约为 $650\text{as} \pm 150\text{as}$.

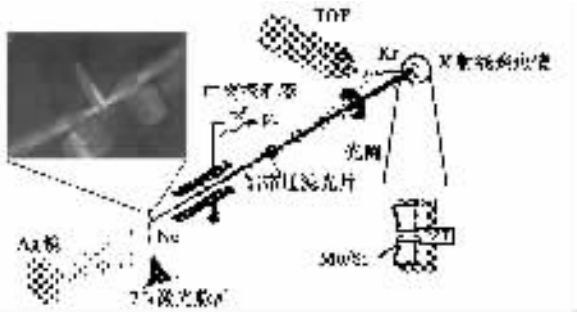


图5 实验装置图

在这个实验中,光电子的产生和测量都是利用惰性气体作为激光靶产生非线性原子电离.在产生过程中,首先超短强飞秒激光激发原子场电离并得到具有阿秒量级的高次谐波串,为了分离出单个阿秒脉冲,关键是要采用脉宽仅几个光周期的飞秒脉冲;在测量过程中,软 X 射线脉冲与气体原子发生光电效应,产生光电子,然后通过观察光电子在驱动激光脉冲作用下能谱位移改变情况,从而得到软 X 射线的脉宽.这里观察角度的选取一方面有我们上面分析的原因,另一方面还可以避免驱动激光激发的阈上光电离的噪音背景.其实,测量过程实际上也是一种改进的超快时间分辨率光谱探测技术,只不过这里是双波长的抽运与探测.这种技术可以帮助我们看到原子内部电子的动力学过程,甚至可以实现人们梦寐以求的对电子波包的控制^[18,19],就像控制一个经典球体的运动轨迹一样.总之,这个实验最大的突破在于三点:第一次测量了阿秒脉冲的时间特性,第一次得到了孤立的阿秒脉冲,第一次在阿秒时间尺度利用双波长抽运探测技术研究了原子中电子的运动机制.

5 面临的问题与应用前景

虽然单个阿秒 X 射线脉冲的产生已经揭开了阿秒现实应用的序幕,但是目前仍然有许多问题需要深入研究与改进,才能使阿秒脉冲真正迈入实用阶段.首先阿秒脉冲的产生和测量技术仍需要继续改善,对这一问题,除了继续追求质量更高、性能更

稳定的高次谐波外,采用可见光波段亚谐波合成阿秒脉冲是一种令人感兴趣的产生技术.由其所得到的阿秒脉冲除了具有比高次谐波高得多的能量外,而且更易控制操作并实现单周期运行.其次,用于产生阿秒高次谐波的强驱动飞秒激光的特性也需深入的研究,尤其是要可靠地控制几个周期的飞秒激光的载波-包络相位^[20,21],因为阿秒脉冲是在驱动激光亚飞秒周期内产生的,所以激光脉冲的控制必须在亚飞秒周期的时间尺度内进行.这样,光场振荡的可重复性必须在阿秒精度内,以便产生重复性很好的阿秒脉冲.在技术上,如何控制强激光脉冲载波-包络相位,使每个飞秒脉冲的时间抖动在阿秒时间精度内,是阿秒实用化进程中需要解决的另一个关键问题.

总之,阿秒科学已经来临,单个阿秒脉冲的出现,在超快光谱学方面掀开了新的篇章,科学家也将从研究原子分子动力学过程的飞秒化学时代进入研究原子内电子动力学的阿秒物理时代.我们相信,随着阿秒脉冲产生技术及抽运探测技术的进一步发展,能够用以揭示电子动力学过程(如内壳层动力学过程)并控制这些过程的阿秒激光物理无疑将是自然科学的一个重要前沿课题.

参 考 文 献

- [1] Zewail A H. *Science*, 1988, 242 :1645
- [2] L'Huillier A, Balcou P. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 70 :774
- [3] Hänsch T W. *Opt. Comm.*, 1990, 80 :71
- [4] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C. *Opt. Comm.*, 1998, 148 :75
- [5] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C. *Phys. Rev. A.*, 1998, 57 :R2285
- [6] Papadogiannis N A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83 :4289
- [7] Kalosha V P, Hermann J. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, 85 :1226
- [8] Paul P *et al.* *Science*, 2001, 292 :1689
- [9] Shelton R K *et al.* *Science*, 2001, 293 :1286
- [10] Kobayashi Y, Torizuka K. *Opt. Lett.*, 2000, 25 :856
- [11] Wei Z Y *et al.* *Opt. Lett.*, 2002, 27 :2121
- [12] Hentschel M *et al.* *Nature*, 2001, 414 :509
- [13] Corkum P B. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71 :1994
- [14] Brabec T, Krausz F. *Mod. of Phys.*, 2000, 72 :545
- [15] 王兆华, 魏志义, 张杰. *物理*, 2002, 31 :659 [Wang Z H, Wei Z Y, Zhang J. *Wulixi (Physics)*, 2002, 31 :659 (in Chinese)]
- [16] Kienberger R *et al.* *App. Phys. B*, 2002, 74 :S3
- [17] Drescher M *et al.* *Science*, 2001, 291 :1923
- [18] Baltuška A *et al.* *Nature*, 2003, 421 :611
- [19] Drescher M *et al.* *Nature*, 2002, 419 :803
- [20] Paulus G G *et al.* *Nature*, 2001, 414 :182
- [21] Dietrich P *et al.* *Opt. Lett.*, 2000, 25 :16