

Development of attosecond pulse measurement principle and technology

赵昆, 高亦谈, 朱孝先, 许思源, 江昱佼, 李远锋, 王佶, 朱江峰⁴, 张大成⁴, 陈云琳⁵ and 魏志义⁵

Citation: [科学通报 66, 835 \(2021\); doi: 10.1360/TB-2020-1502](#)

View online: <https://engine.scichina.com/doi/10.1360/TB-2020-1502>

View Table of Contents: <https://engine.scichina.com/publisher/scp/journal/CSB/66/8>

Published by the [《中国科学》杂志社](#)

Articles you may be interested in

[Principle and progress of attosecond pulse generation](#)

Chinese Science Bulletin **66**, 889 (2021);

[Broadband isolated attosecond pulse generation in a two-color laser field combined with an orthogonally polarized laser pulse](#)

SCIENCE CHINA Physics, Mechanics & Astronomy **55**, 1 (2012);

[Isolated attosecond pulse generation combining propagation effects and a modulated chirped polarization gating technique](#)

SCIENCE CHINA Physics, Mechanics & Astronomy **56**, 888 (2013);

[Generation and control of attosecond laser pulse](#)

Chinese Science Bulletin **66**, 847 (2021);

[Development and prospect on driving laser for attosecond pulse](#)

Chinese Science Bulletin **66**, 878 (2021);



阿秒脉冲测量原理和技术研究进展

赵昆^{1,2*}, 高亦谈^{1,3}, 朱孝先^{1,3}, 许思源^{1,4}, 江昱佼^{1,4}, 李远峰^{1,4}, 王信^{1,5}, 朱江峰⁴, 张大成⁴, 陈云琳⁵, 魏志义^{1,2,3*}

1. 中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190;

2. 松山湖材料实验室, 东莞 523808;

3. 中国科学院大学, 北京 100049;

4. 西安电子科技大学物理与光电工程学院, 西安 710071;

5. 北京交通大学理学院微纳材料及应用研究所, 北京 100044

*联系人, E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn; zywei@iphy.ac.cn

2020-11-22 收稿, 2020-12-18 修回, 2020-12-18 接受, 2020-12-21 网络版发表

国家重点研发计划(2017YFB0405202, 2018YFB1107200)、国家自然科学基金(61690221, 91850209, 11774277)、中国科学院仪器研制项目(YZ201658)和中国科学院前沿科学重点研究计划(QYZDJ-SSW-JSC006)资助

摘要 阿秒脉冲由于极短的脉冲宽度和超高的时间分辨能力, 在物理学、化学、生物学和医学等领域有着潜在应用。自诞生之日起, 阿秒脉冲的时域极限不断突破, 使得阿秒脉冲的测量成为一大研究热点。本文主要分为两个部分, 第一部分回顾了阿秒脉冲与气体介质作用的脉冲测量技术的发展过程, 简述了几种测量阿秒脉冲时域信息的实验原理、实验方案设计以及实验结果。第二部分介绍了从阿秒条纹相机中提取阿秒脉冲时域信息的理论反演算法, 包括算法的原理和结构, 并从计算时间和计算结果精度上对算法进行了比较。文章最后总结了阿秒脉冲测量技术在实验和理论上的困难与挑战, 并展望了未来阿秒脉冲测量的发展方向。

关键词 阿秒脉冲测量, 阿秒条纹相机, 阿秒条纹相机反演算法, 光电离

激光作为20世纪最重要的发明之一, 其优良的特性在各个领域中都展现了显著优势。为了迎合超快过程以及强场物理的研究需要, 研究者们将激光脉冲朝着脉宽越来越短、能量越来越高的方向推进, 并且都取得了卓越的成效。在短脉冲方向, 纳秒、皮秒脉冲的产生给工业加工、材料学等领域的进步提供了不少便利。近半个世纪以来, 飞秒激光技术的日渐成熟, 不仅提升了超快光学的研究水平, 更为人们研究微观超快过程提供了可能。众所周知, 分子尺度的运动在飞秒量级($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$), 飞秒激光的运用使得分子尺度运动的实验观测成为可能^[1]。正如照相机拍照的原理, 快门速度始终要快于目标过程才能得到一个清晰的画面。已

有的飞秒“快门”已经足够解决分子尺度的超快过程; 而电子运动过程的时间尺度在阿秒量级($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), 因此需要寻找“阿秒”快门对其进行表征测量。

20世纪80年代, 人们在激光电离气体原子的实验中观察到高次谐波产生(harmonic generation, HHG)^[2,3]。作为原子在强激光场电离过程中由电子再碰撞产生的相干辐射, HHG在频域上为等间距光梳, 覆盖极紫外(extreme ultra-violet, XUV)至软X射线波段^[4,5]; 在时域上则是单个脉宽为几十至几百阿秒的序列相干光脉冲。1993年, Corkum^[6]提出了强场电离的三步模型, 成为HHG和阿秒光学的理论基础。基于此模型, 1994年, Lewenstein等人^[7]和Corkum等人^[8]利用量子理论对

引用格式: 赵昆, 高亦谈, 朱孝先, 等. 阿秒脉冲测量原理和技术研究进展. 科学通报, 2021, 66: 835~846

Zhao K, Gao Y T, Zhu X X, et al. Principle and technology of attosecond pulse characterization (in Chinese). Chin Sci Bull, 2021, 66: 835~846, doi: [10.1360/TB-2020-1502](https://doi.org/10.1360/TB-2020-1502)

HHG进行了细致的描述，并预言了单个或称“孤立”阿秒脉冲(isolated attosecond pulse, IAP, 区别于HHG的阿秒脉冲序列)产生的理论和方法。由于在瞬态测量中，高次谐波难以提供阿秒精度的时间零点和测量误差，人们在实验中采用了多种选通方法从HHG中获得孤立阿秒脉冲^[9,10]。

2001年，Hentschel等人^[11]首次在实验中测量到650 as宽度的阿秒脉冲，标志着人类打开了阿秒世界的大门。作为目前人类所能产生的最短时间尺度，阿秒脉冲的诞生自然而然地掀起了相关研究的热潮^[9,10,12~14]，其在电子尺度微观超快过程研究中的应用成果展现出了巨大潜力^[9,10,14]。例如，2010年，Goulielmakis等人^[15]发表了利用阿秒脉冲研究氪离子中电子波包超快动力学的成果。他们在实验中观察到了氪离子阿秒脉冲吸收谱随时间的振荡，并推算出了氪离子的电子波包在两个能级之间的振荡跃迁，跃迁时间约为3 fs，测量精度达到了150 as。除应用研究外，阿秒脉冲产生、测量与本体性质的研究也是一大热点，阿秒脉冲的脉宽极限也在不断被突破。2012年，Zhao等人^[16]获得了脉宽67 as的测量结果；次年，中国科学院物理研究所^[17]获得了160 as的孤立脉冲，这是国内首次阿秒脉冲产生的实验结果。2017年，Li等人^[18]通过中红外驱动光产生了光子能量高至水窗波段、脉宽为53 as的孤立脉冲，是目前所得到的孤立阿秒脉冲光子能量的世界纪录；同年稍晚，Gaumnitz等人^[19]报道了43 as的最短阿秒脉冲产生世界纪录，并保持至今。2020年，华中科技大学^[20]、国防科技大学^[21]和中国科学院西安光学精密机械研究所^[22]也分别在实验中测得了孤立阿秒脉冲，代表了国内阿秒光学研究的巨大进步。

尽管近几年由于超强激光的发展，等离子体高次谐波展现了其非凡的潜力^[23]，但是目前国际上主流的实验方法仍为气体高次谐波，配合一定的选通方式以得到孤立阿秒脉冲^[9,10]。相比于其产生过程，对于已经产生的孤立阿秒脉冲或者阿秒脉冲串，如何对其本身的性质(如脉宽、相位、相干性等)进行测量与描述也是一个关键问题^[9,10,14]。虽然阿秒脉冲的测量可以参考现有激光脉冲的测量手段^[24]，但是依旧存在其独特的技术困难。例如，由于其时间尺度超短，无法用电学方法对其进行测量；XUV和软X射线波段的阿秒脉冲在常规介质中有强烈的吸收，并且很难产生非线性效应。因此，需要寻找异于其他尺度脉冲测量的新方案。近年来，出现了多种阿秒脉冲测量与表征的实验方

案，包括传统的阿秒条纹相机和较新的阿秒光谱相位干涉直接电场重建法(spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction, SPIDER)^[25,26]等。目前，阿秒脉冲测量实验的大体思路是利用阿秒脉冲与气体介质进行相互作用，通过其激发的电子特性来反演阿秒脉冲本身的信息。以下将从阿秒脉冲与气体介质作用的脉冲测量实验方案设计，以及得到电子信息后的反演计算过程进行分析总结，并展望阿秒脉冲测量未来的发展方向和可能遇到的瓶颈问题。

1 阿秒脉冲测量的实验方法

由于阿秒脉冲本质上是通过气体高次谐波的选通而来，因此高次谐波的高光子能量、相干性强等特点在阿秒脉冲测量中也被充分利用起来。早在1996年，Véniard等人^[27]就提出利用高次谐波的强相干性，令其与一束驱动光共同作用于气体介质；通过观察光电子能谱中边带(sideband)振幅随XUV光与驱动光之间延时的变化而产生的调制信号来反映XUV脉冲的宽度以及相邻两个阶次谐波之间的相位差。之后，其进一步演化成更为完善的RABITT(reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions)方案^[28]。RABITT作为最早的阿秒脉冲互相关测量方法，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，并且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，并结合傅里叶变换就能得到脉冲的时域信息。该方法于2001年由Paul等人首先在实验上得以实现，产生并测量了单脉冲宽度为250 as的阿秒脉冲串。实验中(图1)，中心波长800 nm、脉宽40 fs的kHz驱动光，通过内外分离的石英片延时元件聚焦到氩气靶上产生高次谐波；随后，通过光阑以调节驱动光的强度；最后，通过球面钨镜反射到第二个氩气靶上产生光电子，并进行电子飞行时间的探测。

RABITT作为一个很好的阿秒脉冲时域信息测量方式，有着广泛的应用，随着测量精度的提升，其延伸出的Rainbow RABITT技术^[30]成为目前解析原子分子多能级结构的有力工具。然而，对于某些间隔较为接近的能级结构而言，如若产生了多套高次谐波重合的情

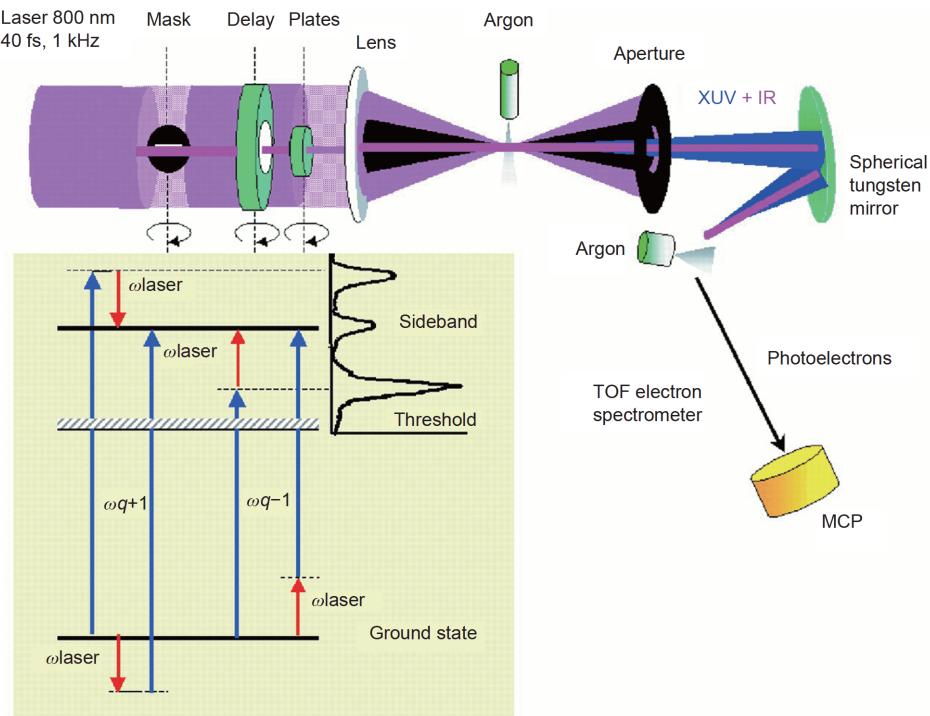


图 1 RABITT的实验装置^[29]. 钛宝石激光器的光束被分为外环与中心部分. 环形部分用于产生谐波(XUV). 只有中心部分的红外脉冲和高次谐波共同传播到磁瓶光谱仪中. 激光被重新聚焦到第二个氩气体靶上, 产生的光电子被飞行时间谱仪(time-of-flight, TOF)探测到. 插图显示了在第二个氩气靶中产生的光电子的量子路径. Reprinted with permission from AAAS
Figure 1 The experimental setup of RABITT^[29]. A beam of a titanium-sapphire laser is split into an outer, annular part and a small central part. The annular part generates harmonics (XUV). Only the central part of the IR pulse and harmonics propagates into a magnetic-bottle spectrometer. The light is refocused onto a second argon (Ar) jet, and the photo-electrons are detected by the time-of-flight (TOF). The inset shows the quantum paths contributing to the photoelectrons generated in the second argon jet. Reprinted with permission from AAAS

况, 则会对边带结构造成影响, 从而影响最终相位测量结果. 因此, 一种名为laser-assisted lateral X-ray photo-ionization^[31]的方法也在不久后提出, 此种方法简化了目标气体能级结构对阿秒脉冲探测的影响. 其基本原理为将XUV光与驱动飞秒激光共同注入到气体中, 使气体在XUV光作用下发生电离, 得到电子的初始动量分布, 其受XUV光的相位、强度、振荡周期的影响; 随后, 在驱动光场的调制下电子的动量分布会发生改变, 改变XUV光与驱动光的延时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. 2001年, Hentschel等人^[11]实现了单个阿秒脉冲的产生, 并利用此方法进行了测量. 他们将驱动激光与氖气作用产生高次谐波, 并用一个直径与所产生的高次谐波匹配的锆(Zr)膜选取光子能量为90 eV左右的连续谱, 驱动光仍然能在锆膜外环通过, 以达到分离驱动光与XUV光的目的; 随后, 通过钼硅(Mo/Si)多层膜反射镜调节驱动光与XUV光的延时, 聚焦在氖气靶上产生光电子, 最终经过反演后得到阿秒脉冲宽度为(650±

150) as. 该方法的关键点在于, 飞行时间光电子能谱仪设置在与激光场矢量垂直的方向, 并在一个较小的角度空间探测光电子能谱随驱动光与XUV光延时的变化, 可以有效减小阈上电离(above threshold ionization, ATI)电子对阿秒脉冲信息获取的干扰.

2002年, Itatani等人^[25]在前述工作的思路上进行了改进, 提出了阿秒条纹相机(attosecond streak camera)的概念. 其基本思路也是基于阿秒脉冲与驱动激光的互相关(图2), 并从两个基本点出发: (1) 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; (2) 将XUV光产生的光电子信息同时对应在能量与角度上. 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. 同时, 其探测的分辨率受光电子的能量、带宽和阿秒脉冲的色散影响. 阿秒条纹相机在加上角度分辨之后, 提高了探测阿秒脉冲宽度的分辨率, 其分辨率与所测脉冲光子能量正相关; 当光电

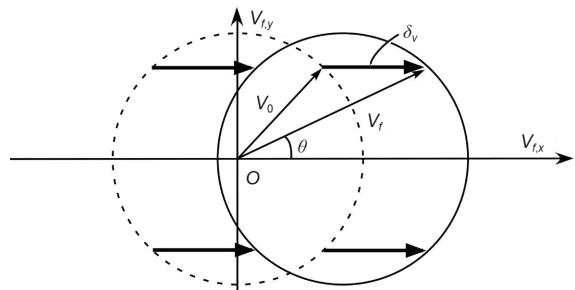


图 2 强驱动光场对给定相位 ϕ_i 的阿秒脉冲电离出的光电子的影响^[25]. 虚线为不加驱动光场的漂移速度分布(v_{ox} , v_{oy}), 实线为加驱动光场的分布. Copyright (2021) by the American Physical Society
Figure 2 Effect of a strong laser field on the photoelectrons ionized by the X-ray pulse at a given phase ϕ_i ^[25]. Dashed circle denotes drift velocity distribution (v_{ox} , v_{oy}) of the photoelectrons without the laser field; solid circle denotes distribution with the laser field. Copyright (2021) by the American Physical Society

子能量在100 eV时,对于傅里叶极限脉宽的脉冲,其分辨率为70 as. 值得注意的是,若选用线偏振光做驱动激光,当XUV脉宽过宽时,会导致条纹调制(streaking)速率变化,这将使得能谱与相位之间关系处理变得十分复杂;用圆偏振光能避免此问题,但是伴随着较低的高次谐波产率. 因此,阿秒条纹相机适用于较短的阿秒脉冲测量. 综上情况,这一方案目前成为在孤立阿秒脉冲测量中最为常用的方式^[9,10,14].

除去测量光电子谱上的调制来分析出阿秒脉冲的时域信息外,仅通过对高次谐波光谱信息的提取分析同样也能部分得出脉冲信息. 2013年, Kim等人^[32]使用非共线的两路光共同作用在氖气靶上,其中采用偏振选通的基频光用于产生孤立阿秒脉冲,而另一路线偏振的二次谐波作为扰动脉冲,用于调制高次谐波光谱面貌. 改变两路激光之间的延时,可以获得某一能量光谱区域的空间面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,此方案也由于不需要电子谱的采集而被称为全光学测量. 近期, Yang等人^[20]在这一技术基础上进行了改进,将两路相同波长但功率密度相差较大的短飞秒脉冲共线作用在气体靶上,保证扰动光足够弱而不影响气体的电离,仅能干预电离出电子的飞行路径,随后扫描延时获得截止区连续谱区域的光谱随延时调制的演化图. 对演化图,可以采用与阿秒条纹相机类似的反演算法来获得阿秒脉冲的相位和时域信息,从而实现脉宽的测量. 以上两种方法在阿秒脉冲产生处,通过对复合场的调控来进行测量,被称为原位测量“*in situ*”^[33],区别于前述

在阿秒脉冲产生之后再在另一气体靶上产生光电离的离位测量“*ex situ*”方法. 原位测量虽然实验结构简单,但只能测量产生处而不是应用位置的阿秒脉冲信息,因此在后续应用上存在一些弊端.

前述的所有方法都是基于阿秒脉冲与驱动激光脉冲之间的互相关来测量阿秒脉冲的信息,而在飞秒领域常用的自相关测量由于缺乏XUV波段的非线性介质而很难运用于阿秒脉冲. 1999年,已有人提出阿秒光自相关(attosecond autocorrelation)的方法^[34],直到2003年, Tzallas等人^[35]才首次实现真正意义上的阿秒脉冲自相关测量. 他们将产生的高次谐波通过铟(In)膜滤除驱动光,使XUV光在两块D型镜上分开产生延时,并随后聚焦在氦气靶上,通过TOF探测He⁺离子产率随延时的变化可以得到所测阿秒脉冲的脉宽. 由于该实验中,从氦气中获得He⁺需要与XUV光作用产生双光子电离,因此也被称为阿秒二阶自相关方法. 2013年, Takahashi等人^[36]通过此种阿秒自相关的方法,实现了脉冲宽度约为500 as、单个阿秒脉冲能量高至1.3 μJ的高能阿秒脉冲测量,能量比一般的孤立阿秒脉冲提升了2~3个数量级. 该实验在阿秒自相关测量中使用的是氮气,通过TOF探测氮气在有延时的高次谐波场下解离得到的N⁺离子作为二阶自相关信号,并且研究了单色场与双色场对N⁺信号的影响. 结合最终测得的阿秒脉冲电离氮气的二阶自相关结果,此工作验证了阿秒自相关法在高能量阿秒脉冲测量中的可行性.

以上方案在高次谐波产生的阿秒脉冲测量中都得以实现,然而随着技术的发展,很多飞秒脉冲通过光谱展宽压缩后就可以达到周期量级尺度,其脉宽能短至几个飞秒甚至几百阿秒. 对于这类波长没有达到XUV波段,脉冲宽度却接近或达到阿秒量级的脉冲, Park等人^[37]于2018年提出了一种测量周期量级脉冲时域信息的方案,被称作TIPTOE(tunneling ionization with a perturbation for the time-domain observation of an electric field)(图3). 该方案基于少周期脉冲与气体作用产生隧穿电离的电子谱,将待测脉冲通过分束片分成基脉冲(fundamental pulse)与信号脉冲(signal pulse);其中,基脉冲能量较强,主要产生电离,而信号脉冲能量较弱,其本身并不能产生电离,只起到对电离后电子谱的调制作用. 通过分析基脉冲与信号脉冲之间的比例与电子谱调制之间的关系,来反映脉冲的时域以及相位信息. 此种方法适用广泛,理论上可以对覆盖紫外到中红外波段的超宽谱、任意形状的少周期,甚至亚周

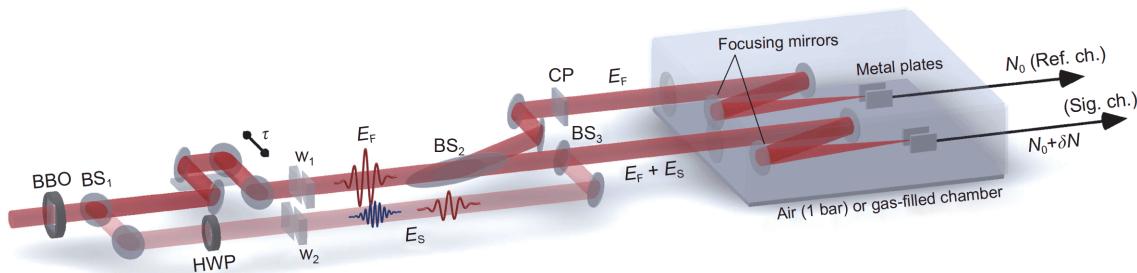


图 3 TIPTOE方案的实验光路图^[37]. 入射的激光脉冲分为基脉冲 E_F 与信号脉冲 E_S . 在参考通道中, 电离产量 N_0 仅通过基脉冲作用测量得到; 在信号通道中, 电离产量通过基脉冲与信号脉冲共同作用测量得到. Reprinted Fig. 2 with permission from Ref. [37], © The Optical Society
Figure 3 Scheme of TIPTOE^[37]. Incident laser pulse is separated into the fundamental pulse E_F and the signal pulse E_S . In the reference channel, the ionization yield N_0 is measured using only the fundamental pulse. In the signal channel, the ionization yield is measured using the fundamental and signal pulses. Reprinted Fig. 2 with permission from Ref. [37], © The Optical Society

期脉冲的信息进行测量. 其不需要复杂的真空系统与测量系统, 并且结果与拍赫兹光学示波器(petahertz optical oscilloscope)^[38]的测量结果比对后得到了验证.

除去以上主流的阿秒脉冲测量实验方案外, 一些理论设计同样为阿秒脉冲的测量提供了新的思路. 例如, 2001年, Scrinzi等人^[39]提出Attosecond cross correlation technique. 他们认为, 将阿秒脉冲与其驱动激光同时作用于目标气体, 通过激光场对气体库仑势的调控, 使其正好能发生XUV单光子电离, 最后调节驱动激光脉冲与阿秒脉冲的延时来控制相关离子的产率, 进而反演出阿秒脉冲的宽度. 同时, 由于该过程的电离率对XUV光强的线性响应, 可以使探测的光谱范围延伸至10 nm以下, 这是当时所不能达到的. 由于该方法中气体的电离势需要与XUV光子能量严格匹配, 因此对所选气体有较高要求, 且对于不同光子能量的阿秒脉冲, 还需要选择不同的气体与之对应, 操作较为复杂. 此外, 该方法还可以根据同等调制深度的调制个数来判断阿秒脉冲串的脉冲数量.

2003年, Bandrauk等人^[40]在用TDSE(time-dependent Schrödinger equation)对近红外飞秒光与XUV阿秒脉冲共同作用于氢原子做计算时发现, 在激光场都为线偏振的情况下, 光场传播方向产生的光电子数与背向产生的光电子数所构成的归一化最大不对称系数中包含了XUV脉冲脉宽的信息, 并呈简单的线性关系; 通过光电子数与不对称系数的线性关系推演阿秒脉冲时域信息的方法被称作asymmetric photoionization method. 该方案需要预先计算出飞秒光与XUV脉冲之间的延时, 但是仅需要测量前向与后向的电子数即可, 省去了前述各种算法所需要的光电子能谱的测量与分析.

但是, 考虑到实验情况下 ATI对信号的影响及其他惰性气体能级的复杂性, 该方法在阿秒脉冲测量的实际操作中只存在理论上的可能.

此外, 还有一种方案被称作阿秒SPIDER法(attosecond spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction)^[26]. 鉴于SPIDER法在飞秒脉冲测量的成效^[24], 人们也考虑将其迁移至阿秒脉冲测量中. 然而在飞秒SPIDER测量中, 待测脉冲需要分束后引入一定的延时与频移, 才能获得干涉信号并处理得到脉宽信息. 由于飞秒脉冲光谱范围主要在可见光到红外波段, 待测脉冲分束后的延时与频移可以通过非线性介质引入. 而对于阿秒脉冲所在的XUV波段, 这些介质都会对其有强烈的吸收, 因此想要引入频移需要另辟蹊径. 2003年, Quéré等人^[26]找到了解决途径. 他们认为, 阿秒脉冲作用于气体原子电离的电子波包在激光场作用下产生的能量移动等同于飞秒SPIDER测量中频移的效果, 再引入延时后进行干涉反演, 能够获得波包的相位信息, 进而得到所测阿秒脉冲的光谱相位信息. 他们进行了模拟计算, 首先产生两个相同的阿秒脉冲的光电子谱, 其中一个在激光场作用下产生能量移动, 随后将两脉冲在频域上叠加获得干涉光谱, 最终使用与飞秒SPIDER类似的算法反演获得阿秒脉冲的光谱相位信息. 但是, 此方法尚未在实验中实现.

2 阿秒脉冲的理论反演算法

阿秒条纹相机是目前最常用的阿秒脉冲实验测量方案, 其电子能谱中包含了阿秒脉冲的相位信息. 但阿秒脉冲的相位信息并不能简单地通过公式从电子能谱中提取, 而是需要理论反演的方法. 具体来说, 首先, 从

阿秒条纹相机的物理过程出发, 通过近似求解薛定谔方程得到从阿秒脉冲到电子能谱的计算公式; 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, 通过优化方法寻找使误差函数极小的阿秒脉冲相位作为结果并输出^[9,10,12,14,25].

在阿秒条纹相机中, 电子被阿秒脉冲电离并在飞秒驱动光场作用下到达连续态, 这个过程在薛定谔方程中表示为

$$i\partial_t \Psi(\mathbf{r}) = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 - \frac{1}{r} - \mathbf{r}E(t) \right] \Psi(\mathbf{r}), \quad (1)$$

其中, $E(t) = E_i + E_x$, 包括飞秒光场 E_i 和阿秒光场 E_x .

解这个方程从强场近似(strong field approximation, SFA)出发^[7], 忽略中间的所有激发态, 假设电子直接从基态电离到连续态, 同时忽略库仑势的作用, 则可以建立从阿秒脉冲到电子能谱的正向计算公式^[41]:

$$\begin{aligned} I(\vec{p}, \tau) &= \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_x(t) d(\vec{p} + \vec{A}(t + \tau)) \right. \\ &\quad \left. \exp(i\phi(\vec{p}, t + \tau)) \exp(-i(p^2/2 + I_p)t) dt \right|^2, \\ \phi(\vec{p}, t + \tau) &= - \int_{t+\tau}^{+\infty} \left(\vec{p} \cdot \vec{A}(t') + \frac{1}{2} A^2(t') \right) dt', \end{aligned} \quad (2)$$

其中, $E_x(t) d(\vec{p} + \vec{A}(t + \tau))$ 表示电离的电子波包, $\exp(i\phi(\vec{p}, t + \tau))$ 表示电子波包在驱动光作用下的相位调制, $I(\vec{p}, \tau)$ 即实验测量得到的条纹能谱.

Mairesse和Quéré^[41]于2005年提出的FROG-CRAB算法(frequency resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts)借鉴了飞秒脉冲测量中的FROG方法, 并将其迁移至XUV波段, 可用于阿秒脉冲时域测量. 这个方法要求式(2)中电子波包项以及相位调制项不能存在动量, 为此需假设光电子产生截面在整个阿秒脉冲的带宽上都近似常数, 即将式(2)中的 $d(\vec{p} + \vec{A}(t + \tau))$ 视为常数并提出积分号, 同时用带宽的中间值 p_c 替换相位调制项 $\exp(i\phi(\vec{p}, t + \tau))$ 中的 \vec{p} , 即中心动量近似. 这样, 式(2)简化为

$$S_{\text{FROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} P(t) G(t + \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (3)$$

其中, $P(t) = E_x(t - \tau)$ 为待测的阿秒脉冲; $G(t) = e^{i\phi(t)}$ 表示飞秒脉冲对光电子相位的调制作为门脉冲. 误差函数定义为实验测量的条纹图与FROG计算得到的条纹图的均方差:

$$\varepsilon_{\text{FROG}} = \left[\frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N [S_{\text{CALC}}(\omega_i, \tau_j) - S_{\text{FROG}}(\omega_i, \tau_j)]^2 \right]^{1/2}. \quad (4)$$

在FROG中, 通过广义投影算法(generalized projection algorithm, GPA)寻找一组阿秒脉冲 $P(t)$ 和驱动光场 $G(t)$ 使得误差函数最小, 它的计算步骤如下^[42](图4):

- (1) 给出一组猜测的初始阿秒脉冲 $P(t)$ 和驱动光场 $G(t)$, 用它们的外积构建初始矩阵;
- (2) 将初始矩阵做傅里叶变换, 构建初始的能谱;
- (3) 保留能谱中的相位项, 将其模替换为实验测得的光谱;
- (4) 对新能谱进行逆傅里叶变换, 并通过最小二乘法获取新一组优化的 $P(t)$ 和 $G(t)$.

FROG-CRAB也存在一些弊端. 一是由于中心动量近似, 需假定所测量的阿秒脉冲所包含连续谱光子能量的宽度远小于其光电子谱的中心能量, 而要产生更短的阿秒脉冲, 计算更宽的光子能谱势在必行. 另一个弊端在于, 对于更短的阿秒脉冲, 其超宽的能谱需要更高的分辨率. 强驱动光场虽然能够保证条纹相机能谱在时域上的分辨率, 但也会带来噪声甚至淹没条纹信号. 为了克服上述缺点, Chini等人^[43]提出PROOF(phase retrieval by omega oscillation filtering)算法, 这是较FROG-CRAB更为简便的一种反演方法. 它的主要思想是在驱动光场较弱的情况下, 将式(2)按照驱动光的频率泰勒展开:

$$S_{\text{PROOF}}(W, \tau_D) = S_0 + \frac{\sqrt{2W_0}}{v} S_{\omega_L} + \frac{2W_0}{v^2} S_{2\omega_L}. \quad (5)$$

在展开的过程中假设跃迁偶极矩为常数, 但避免了中心动量近似. 误差函数的定义与FROG相同. 这样,

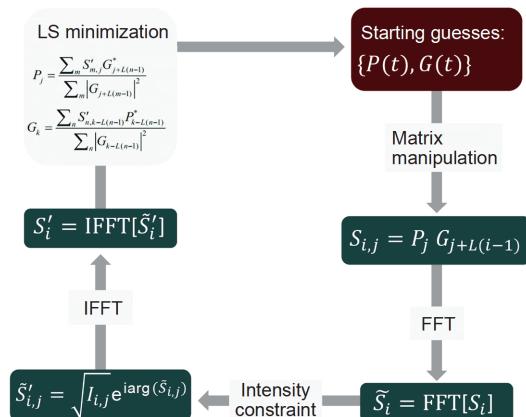


图4 (网络版彩色)FROG-CRAB反演步骤图解

Figure 4 (Color online) FROG-CRAB inversion algorithm diagram

阿秒脉冲信息的检索依然可以利用GPA算法^[16], 它的反演步骤如下(图5):

- (1) 给出一组猜测的初始阿秒脉冲 $P(t)$ 和驱动光场 $G(t)$, 通过外积构建初始矩阵;
- (2) 将初始矩阵做傅里叶变换, 构建初始的能谱;
- (3) 为了加快收敛速度, 第一次迭代时使用FROG-CRAB方法, 即把计算得到能谱的强度部分用实验测得的能谱强度替换, 相位保留; 在之后的计算中, 实验能谱和理论能谱都根据驱动光场的频率做泰勒展开, 每次迭代仅将理论能谱泰勒展开的第二项(即激光频率 ω_L 振荡项)用实验能谱的第二项替换;
- (4) 通过逆傅里叶变换并分解奇异值, 可以得到一组新的阿秒脉冲 $P(t)$ 和驱动光场 $G(t)$;
- (5) 开始新的循环, 直到精度收敛到设定目标.

由于电子的动量可以从积分中的第二项解析地去除, 与FROG-CRAB反演算法相比, PROOF不需要中心动量近似, 特别是在检索宽光谱脉冲上, PROOF比FROG-CRAB更精确. 此外, 因为只需要一个飞秒驱动光的光子来耦合连续态, 观察这种振荡不需要高的条纹强度, 也就不需要高强度的驱动脉冲. 然而, PROOF将驱动光场限制在微扰强度范围内, 并且为了满足缓慢变化的包络近似而限制条纹脉冲的持续时间. 当需要同时描述阿秒脉冲和复杂的宽带电场波形(这些波形明显违反了PROOF的条件)时, 实验中的有效性会被限制.

VTGPA(Volkov transform generalized projections algorithm)是一种基于Volkov态的广义投影算法^[44], 该方法可以在检索过程中跳过傅里叶变换, 从而在计算能谱的过程中避免中心动量近似. VTGPA中条纹图的计算方法与式(2)相同, 其中 $d(\bar{P} + \bar{A}(t + \tau))$ 通过从HFS

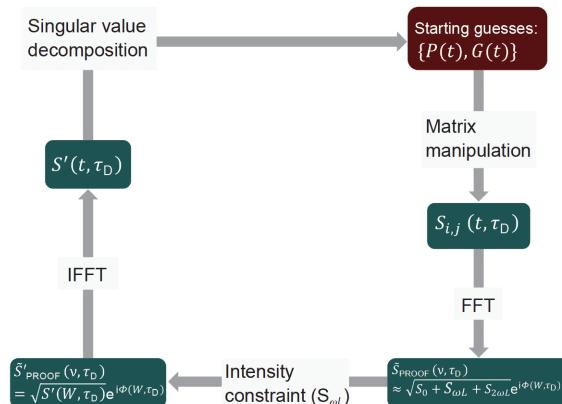


图 5 (网络版彩色)PROOF反演步骤图解
Figure 5 (Color online) PROOF inversion algorithm diagram

(Hartree-Fock-Slater)模型中获得的有效原子势计算得到^[45], 在积分的过程中使用Volkov态作为正交完备的基矢而不是平面波直接计算得到条纹图^[46]. 它的计算步骤如下(图6):

- (1) 给出一组猜测的初始阿秒脉冲 $P(t)$ 和驱动光场 $G(t)$, 积分构建初始能谱;
- (2) 保留构建能谱的相位项, 将其模用实验测得的能谱强度替换;
- (3) 用最小二乘法获取阿秒脉冲的强度和相位信息, 用Brent方法^[47]获取驱动光场 $G(t)$, 重复步骤(1).

VTGPA的误差函数与FROG相同, 即当误差函数收敛至最小时程序可结束搜索. VTGPA的计算过程避免了过多的近似, 与FROG直接比较时, VTGPA的反演和模拟谱图之间的均方误差(mean-square error, MSE)降低了3个数量级以上, 并更快地收敛到每次迭代的解. 在其他方面, 它具有FROG-CRAB算法的所有优点. 此外, 由于VTGPA没有对驱动光场施加任何限制, 使得它可以作为同时表征复杂飞秒驱动场和阿秒脉冲的有用工具. 基于进化算法(evolutionary algorithm)的技术被证明可以准确可靠地从模拟谱图和具有高信噪比的实验条纹图中检索光谱相位, 但需要新的算法通过利用全二维谱图中固有的冗余数据来提高证明的鲁棒性.

PROBP-AC(phase retrieval of broadband pulses with autocorrelation)^[48,49]是一种使用遗传算法检索XUV相位的方法, 它不像以前的相位检索算法那样使用整套条纹能谱, 而是从条纹能谱的时间自相关系数 $Q(\tau_1, \tau_2) = \int S(E, \tau_1)S(E, \tau_2)dE$ 中提取相位信息. 在正向计算过程中, 跃迁偶极矩使用单活性电子模型势^[50], 并直接对式(2)进行积分, 避免了中心动量近似. 将阿秒脉冲的相位曲线通过一组B样条插值系数 $\{b_i\}$ 构建. 其在

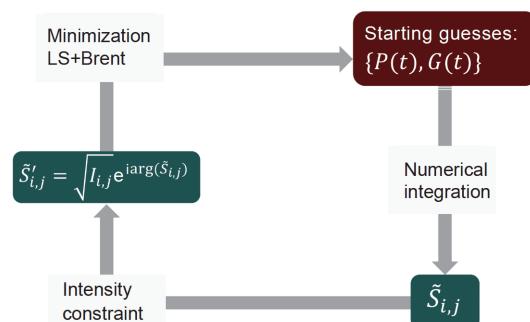


图 6 (网络版彩色)VTGPA反演算法图解
Figure 6 (Color online) VTGPA inversion algorithm diagram

反演过程中使用遗传算法(general algorithm, GA)来寻找系数 $\{b_i\}$, 使得误差函数有最小值。遗传算法的反演步骤如下(图7)。

(1) 通过映射公式将 $\{b_i\}$ 中的每一个

$$b_i = x_{\min} + \frac{x_{\max} - x_{\min}}{2^L - 1} \sum_{j=0}^{L-1} b_i^{(B)} 2^j$$

进制表示形式, $\{b_i\}$ 中所有 n 个 b_i (大小 $n \times L$)被称为染色体, 其上的片段被称为基因(长度为 L)。

(2) 初始化种群: 遗传算法中一组 $\{b_i\}$ 被视为一个个体, 假设一代中有 N 个个体构成的种群, 使用均匀的随机实数发生器(在0, 1之间)来产生第一代种群(长度为 $N \times n \times L$)。

(3) 用适应度函数评估每个个体的适应度。适应度定义为式(2)计算得到条纹图的自相关系数与实验测量条纹图的自相关系数的方差, 它代替了FROG中的误差函数来反映反演结果与实验的接近程度:

$$E[b_i] = \sum_{k,l} [Q_0(\tau_k, \tau_l) - Q_1(\tau_k, \tau_l)]^2.$$

(4) 随机选择种群中的两个个体, 选择适应度较大的个体作为第一个亲本, 再次应用相同的选择方案来选择第二个亲本; 接下来, 让两个亲本通过交叉产生一个新的后代; 这种选择和交叉方案被执行了 N 次, 产生了 N 个后代; 为了防止计算过早收敛, 在产生后代的过程中允许遗传变异, 以保持遗传多样性;

(5) 重复整个繁衍的过程, 使得每一代的适应度优于上一代, 直到满足设定的代数后终止计算。

PROBP-AC的收敛速度比之前的迭代算法快得多, 精度也更高, 可以在较短的时间内检索到准确的相位。但它只能反演用光滑的B样条函数插值表示的相位信息, 其他的参数如阿秒脉冲的强度信息和驱动光场的信息要求通过实验测量。

人工智能机器学习的发展为阿秒能谱的反演提供了另一种思路。通过训练具有已知XUV场的能谱图, 神经网络被用来寻找条纹能谱和XUV场之间的映射函数。一旦映射函数被识别, 网络就可以从实验测得的条纹能谱中预测XUV脉冲, 以实现阿秒相位检索^[51]。

用于阿秒条纹相位检索的神经网络由不同大小的卷积层块组成。通过式(2)生成条纹能谱图作为数据集来对神经网络进行训练和测试(即通过监督学习进行训练), 并利用成本函数评价神经网络的准确性。成本函数定义为机器学习反演的阿秒脉冲相位与生成数据集

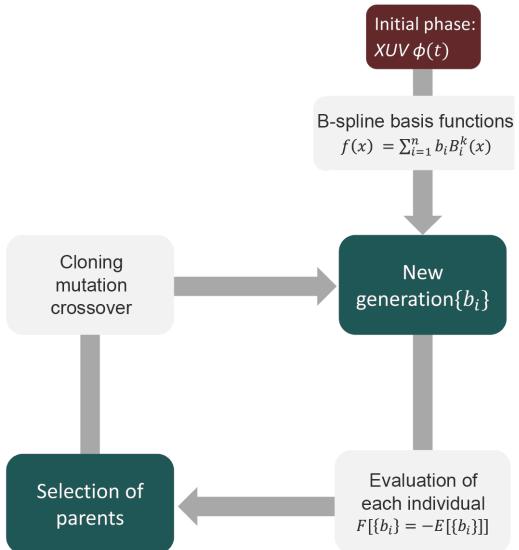


图7 (网络版彩色)PROBP-AC反演步骤图解

Figure 7 (Color online) PROBP-AC inversion algorithm diagram

设置的阿秒脉冲相位的方差, 其作为反演程序收敛的指标, 作用与误差函数相同。为了提高神经网络输出的准确性, 通过再次学习以调整用监督学习训练的网络的权重, 并定义了一个新的成本函数进行评价。新的成本函数定义为机器学习反演的阿秒脉冲代入式(2)生成的条纹图与生成数据集的条纹图的方差。在用8万个样本进行训练后, 用训练数据集中的条纹图对神经网络的输出进行测试。将输出的XUV光谱与真实的XUV光谱进行比较, 并用输出的XUV和飞秒驱动光谱产生条纹能谱。

神经网络的主要优点是, 一旦正确训练, 它几乎可以立即(毫秒)从其他条纹图中检索相位。尽管神经网络具有简单性和普遍性, 但这种反演方法有两个主要缺点: (1) 反演算法的确定性导致无法处理模糊的模型, 即噪声存在下对脉冲重建存在不确定性; (2) 神经网络重建脉冲时用到的算法没有与物理模型结合起来。为了克服这些缺点, Zhu等人^[52,53]提出了一种基于条件变分生成网络(conditional variational generative network, CVGN)的阿秒脉冲检索方案(图8)。这种方案将统计学中的贝叶斯公式与机器学习中的循环网络结合起来, 通过建立一个单独训练的生成模型来逼近先验信号(正则化项), 利用已知的测量系统的正向过程来训练条件变分生成模型。CVGN的优点是可以模拟以给定的条纹图测量为条件的脉冲轮廓的分布, 从而能够评估检索到的脉冲的不确定性。

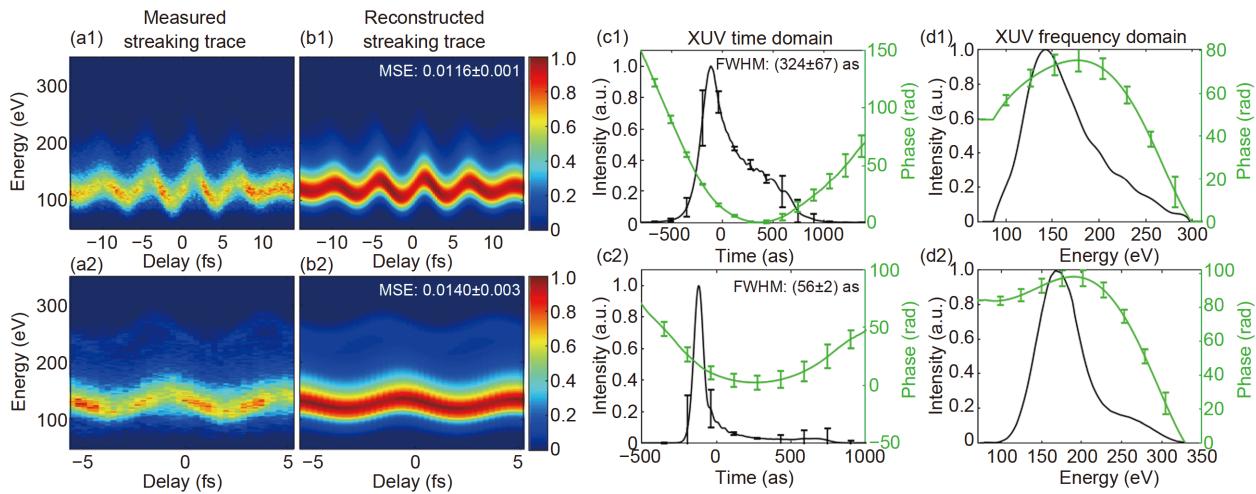


图 8 基于条件变分生成网络反演的2个实验条纹能谱结果^[53]. (a1), (a2) 测量的条纹能谱; (b1), (b2) 基于10个反演脉冲平均值恢复的条纹能谱. 检索到的时域((c1), (c2))和频域((d1), (d2))的阿秒脉冲. 误差条表示10个实例的标准偏差. Reprinted Fig. 3 from Ref. [53]

Figure 8 Retrieval of 2 experimental streaking traces with conditional variational generative network^[53]. (a1), (a2) Measured streaking trace; (b1), (b2) average of reconstructed streaking trace from 10 retrieved pulses. Time ((c1), (c2)) and frequency ((d1), (d2)) domain of the retrieved XUV pulse. The error bars mark the standard deviation of the 10 instances. Reprinted Fig. 3 from Ref. [53]

条纹相机的反演算法仍在快速发展. 从FROG-CRAB中对跃迁偶极矩的简化以及中心动量近似, 到VTGPA和PROPB-AC中仅使用SFA近似, 正向计算的过程变得越来越精确, 适用范围也变得更宽; 从投影算法到进化算法、机器学习, 其反演程序的计算时间越来越快, 等待结果的时间大大减少, 因此提高了计算效率. 同时, 反演程序抵抗实验噪声的鲁棒性也越来越好, 这使得从实验数据反演得到的阿秒脉冲信息更具有说服力. 但反演算法仍有进步的空间, 比如通过第一性原理计算薛定谔方程, 可以得到比强场近似更精确的结果, 而自相关系数与机器学习的结合可能会让算法更有效率.

3 总结与展望

总之, 阿秒脉冲的产生与测量技术为原子中电子动力学过程的研究提供了强有力的手段. 并且, 伴随着技术与原理方案的进步, 阿秒脉冲将会被越来越广泛且方便地应用于超快时间尺度与超微空间结构上的研究, 也必然会吸引更多的力量进入阿秒科学领域. 然而不可否认的是, 现有阿秒脉冲的测量技术研究工作依旧存在一些困难与挑战. 首先, 从实验装置上来说, 阿秒脉冲测量系统需要的仪器设备造价昂贵、操作复杂、不便于迁移与调节、往往需要对该套系统光机电与程序算法都较为熟练的专业人士才能够操作, 并且存在复杂系统的

通病: 无法保证长时间稳定运行. 其次, 系统中依旧存在很多不可控的待研究的参量, 比如与气体靶作用时的气压参数等. 此外, 在反演算法方面, 同样存在会对最终测量结果带来误差的缺陷, 例如, 对条纹测量图进行反演计算时引入的近似会影响真实结果, 为了满足近似条件需要对实验参数进行限制等. 除了上述实验与理论中分别存在的问题, 当我们结合整个测量系统的实验装置与算法进行分析时, 也会引入新的测量误差. 例如, 在阿秒脉冲测量实验中不可避免的噪声会给后续反演算法的精度带来影响, 特别是对机器学习这种结果高度依赖于训练集的算法, 无噪声的模拟结果对真实存在噪声的实验结果进行预测必然会在一定的误差. 综上, 虽然目前阿秒脉冲的表征与测量技术取得了一定的成果, 但是其依旧有极大的改进空间, 在实验上可以寻求更合适的非线性介质, 更高精度的探测器, 甚至从原理上对其进行改进; 在反演算法上, 需要在运算量与反演时间允许的情况下, 减少近似的引入, 用机器学习替代常规算法就是一个不错的尝试, 即使不可避免随之而来的运算精度问题. 可以预见, 阿秒脉冲测量将朝着小型化、高效化、精细化的方向发展, 相信在不久的将来, 阿秒脉冲测量的研究会伴随着更短脉冲的产生而实现突破, 并且将持续作为人类有史以来最为精密的研究工具而存在, 进而为超快时间分辨的超精细原子分子动力学研究带来深远的影响.

参考文献

- 1 Zewail A H. Laser femtochemistry. *Science*, 1988, 242: 1645
- 2 McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J Opt Soc Am B*, 1987, 4: 595–601
- 3 Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 1988, 21: L31–L35
- 4 Mashiko H, Gilbertson S, Chini M, et al. Extreme ultraviolet supercontinua supporting pulse durations of less than one atomic unit of time. *Opt Lett*, 2009, 34: 3337
- 5 Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science*, 2012, 336: 1287–1291
- 6 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- 7 Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys Rev A*, 1994, 49: 2117–2132
- 8 Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses. *Opt Lett*, 1994, 19: 1870–1872
- 9 Chini M, Zhao K, Chang Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nat Photonics*, 2014, 8: 178–186
- 10 Calegari F, Sansone G, Stagira S, et al. Advances in attosecond science. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2016, 49: 062001
- 11 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509
- 12 Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163–234
- 13 Chang Z, Corkum P. Attosecond photon sources: The first decade and beyond. *J Opt Soc Am B*, 2010, 27: B9
- 14 Peng L Y, Jiang W C, Geng J W, et al. Tracing and controlling electronic dynamics in atoms and molecules by attosecond pulses. *Phys Rep*, 2015, 575: 1–71
- 15 Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion. *Nature*, 2010, 466: 739–743
- 16 Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891
- 17 Zhan M J, Ye P, Teng H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV. *Chin Phys Lett*, 2013, 30: 093201
- 18 Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- 19 Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. *Opt Express*, 2017, 25: 27506–27518
- 20 Yang Z, Cao W, Chen X, et al. All-optical frequency-resolved optical gating for isolated attosecond pulse reconstruction. *Opt Lett*, 2020, 45: 567
- 21 Wang X, Wang L, Xiao F, et al. Generation of 88 as isolated attosecond pulses with double optical gating. *Chin Phys Lett*, 2020, 37: 023201
- 22 Wang X L, Xu P, Li J, et al. Isolated attosecond pulse with 159 as duration measured by home built attosecond streaking camera (in Chinese). *Chin J Laser*, 2020, 47: 0415002 [王向林, 徐鹏, 李捷, 等. 利用自研阿秒条纹相机测得159 as孤立阿秒脉冲. 中国激光, 2020, 47: 0415002]
- 23 Quéré F, Thaury C, Monot P, et al. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 125004
- 24 Walmsley I A, Dorner C. Characterization of ultrashort electromagnetic pulses. *Adv Opt Photonics*, 2009, 1: 308–437
- 25 Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera. *Phys Rev Lett*, 2002, 88: 173903
- 26 Quéré F, Itatani J, Yudin G, et al. Attosecond spectral shearing interferometry. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 073902
- 27 Véniard V, Taïeb R, Maquet A. Phase dependence of ($N+1$)-color ($N>1$) IR-UV photoionization of atoms with higher harmonics. *Phys Rev A*, 1996, 54: 721
- 28 Muller H G. Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions. *Appl Phys B*, 2002, 74: S17–S21
- 29 Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 2001, 292: 1689–1692
- 30 Gruson V, Barreau L, Jiménez-Galan Á, et al. Attosecond dynamics through a Fano resonance: Monitoring the birth of a photoelectron. *Science*, 2016, 354: 734–738
- 31 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 2001, 291: 1923–1927
- 32 Kim K T, Zhang C, Shiner A D, et al. Manipulation of quantum paths for space–time characterization of attosecond pulses. *Nat Phys*, 2013, 9: 159–163
- 33 Kim K T, Villeneuve D M, Corkum P B. Manipulating quantum paths for novel attosecond measurement methods. *Nat Photonics*, 2014, 8: 187–194
- 34 Papadogiannis N A, Witzel B, Kalpouzos C, et al. Observation of attosecond light localization in higher order harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 1999, 83: 4289–4292
- 35 Tzallas P, Charalambidis D, Papadogiannis N A, et al. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 2003, 426: 267–271

- 36 Takahashi E J, Lan P, Mücke O D, et al. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses. *Nat Commun*, 2013, 4: 1–9
- 37 Park S B, Kim K, Cho W, et al. Direct sampling of a light wave in air. *Optica*, 2018, 5: 402–408
- 38 Kim K T, Zhang C, Shiner A D, et al. Petahertz optical oscilloscope. *Nat Photonics*, 2013, 7: 958–962
- 39 Scrinzi A, Geissler M, Brabec T. Attosecond cross correlation technique. *Phys Rev Lett*, 2001, 86: 412–415
- 40 Bandrauk A D, Chelkowski S, Shon N H. How to measure the duration of subfemtosecond XUV laser pulses using asymmetric photoionization. *Phys Rev A*, 2003, 68: 041802
- 41 Mairette Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys Rev A*, 2005, 71: 011401
- 42 Gagnon J, Goulielmakis E, Yakovlev V S. The accurate FROG characterization of attosecond pulses from streaking measurements. *Appl Phys B*, 2008, 92: 25–32
- 43 Chini M, Gilbertson S, Khan S D, et al. Characterizing ultrabroadband attosecond lasers. *Opt Express*, 2010, 18: 13006–13016
- 44 Keathley P D, Bhardwaj S, Moses J, et al. Volkov transform generalized projection algorithm for attosecond pulse characterization. *New J Phys*, 2016, 18: 073009
- 45 Bhardwaj S, Son S K, Hong K H, et al. Recombination-amplitude calculations of noble gases, in both length and acceleration forms, beyond the strong-field approximation. *Phys Rev A*, 2013, 88: 053405
- 46 Boca M. On the properties of the Volkov solutions of the Klein–Gordon equation. *J Phys A-Math Theor*, 2011, 44: 445303
- 47 Anderson D. Algorithms for minimization without derivatives. *IEEE Trans Automat Contr*, 1974, 19: 632–633
- 48 Zhao X, Wei H, Wu Y, et al. Phase-retrieval algorithm for the characterization of broadband single attosecond pulses. *Phys Rev A*, 2017, 95: 043407
- 49 Yu W W, Zhao X, Wei H, et al. Method for spectral phase retrieval of single attosecond pulses utilizing the autocorrelation of photoelectron streaking spectra. *Phys Rev A*, 2019, 99: 033403
- 50 Tong X M, Lin C D. Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2005, 38: 2593–2600
- 51 White J, Chang Z. Attosecond streaking phase retrieval with neural network. *Opt Express*, 2019, 27: 4799
- 52 Zhu Z, Sun Y, White J, et al. Signal retrieval with measurement system knowledge using variational generative model. *IEEE Access*, 2020, 8: 47963–47972
- 53 Zhu Z, White J, Chang Z, et al. Attosecond pulse retrieval from noisy streaking traces with conditional variational generative network. *Sci Rep*, 2020, 10: 1–7

Summary for “阿秒脉冲测量原理和技术研究进展”

Principle and technology of attosecond pulse characterization

Kun Zhao^{1,2*}, Yitan Gao^{1,3}, Xiaoxian Zhu^{1,3}, Siyuan Xu^{1,4}, Yujiao Jiang^{1,4}, Yuanfeng Li^{1,4}, Ji Wang^{1,5}, Jiangfeng Zhu¹, Dacheng Zhang⁴, Yunlin Chen & Zhiyi Wei^{1,2,3*}

¹ Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

² Songshan Lake Material Laboratory, Dongguan 523808, China;

³ University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

⁴ School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China;

⁵ Institute of Applied Micro-Nano Materials, School of Science, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China

* Corresponding authors, E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn; zywei@iphy.ac.cn

Attosecond pulses have potential applications in the fields of physics, chemistry, biology, and medicine owing to the extremely high time resolution brought by their extremely short pulse widths. The generation and measurement technology of attosecond pulses provides a powerful means for the study of electron dynamical process in atoms. Since the date of its birth, the time width of an attosecond pulse has become shorter and shorter, making its measurement a challenging task. Although attosecond pulses are more and more widely used in the study of ultrafast dynamics and more interest is attracted into the field of attosecond science, it is undeniable that there are still difficulties and challenges for the measurement of attosecond pulses. This review is divided into two parts. The first part presents the development of technics for characterizing attosecond pulses, and briefly describes several experimental principles, setups and results for acquiring time-domain information of attosecond pulses, including RABITT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) and laser-assisted lateral X-ray photoionization for measuring attosecond pulse train, attosecond streak camera for measuring single attosecond pulses, TIPTOE (tunneling ionization with a perturbation for the time-domain observation of an electric field) for measuring time-domain information of periodic pulses, as well as theoretical proposals such as attosecond cross correlation, asymmetric photoionization method, and SPIDER (attosecond spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction). The second part introduces the principle and structure of inversion algorithms for extracting time-domain information of attosecond pulses from spectrograms obtained with an attosecond streak camera, including FROG-CRAB (frequency resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts), PROOF (phase retrieval by omega oscillation filtering), VTGPA (Volkov transform generalized projections algorithm), PROBP-AC (phase retrieval of broadband pulses with autocorrelation) and CVGN (conditional variational generative network). We also evaluate the calculation time and accuracy of the algorithms. Finally, we summarize the experimental and theoretical challenges of the characterization of attosecond pulses, and look forward to the future development of attosecond pulse measurement.

attosecond pulse characterization, attosecond streak camera, phase retrieval of attosecond streaking trace, photoionization

doi: [10.1360/TB-2020-1502](https://doi.org/10.1360/TB-2020-1502)