

超短激光脉冲测量研究进展

黄沛 袁浩 夏宇峰 曹华保 王向林 王虎山 徐鹏 侯洵 付玉喜

Research progress of ultra-short laser pulse characterization

HUANG Pei, YUAN Hao, XIA Yufeng, CAO Huabao, WANG Xianglin, WANG Hushan, XU Peng, HOU Xun, FU Yuxi

引用本文:

黄沛, 袁浩, 夏宇峰, 等. 超短激光脉冲测量研究进展[J]. 应用光学, 2023, 44(6): 1157–1166. DOI: 10.5768/JAO202344.0610001

HUANG Pei, YUAN Hao, XIA Yufeng, et al. Research progress of ultra-short laser pulse characterization[J]. Journal of Applied Optics, 2023, 44(6): 1157–1166. DOI: 10.5768/JAO202344.0610001

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.5768/JAO202344.0610001>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

单脉冲飞秒激光时域参数测量技术研究

Research on time domain parameters measurement of single pulse femtosecond laser

应用光学. 2020, 41(4): 690–696 <https://doi.org/10.5768/JAO202041.0407001>

混沌-脉冲混合信号光时域反射仪

Chaotic-pulse hybrid signal optical time domain reflectometer

应用光学. 2017, 38(4): 569–574 <https://doi.org/10.5768/JAO201738.0401009>

飞秒激光脉冲宽度和脉冲波形测试技术

Research on femto-second laser pulse width and pulse waveform measurement technology

应用光学. 2019, 40(2): 291–299 <https://doi.org/10.5768/JAO201940.0203003>

双飞秒激光频率梳光谱测量技术研究进展

Research progress of double femtosecond laser frequency comb spectroscopy measurement technology

应用光学. 2021, 42(1): 157–175 <https://doi.org/10.5768/JAO202142.0107003>

脉冲激光测距回波信号时间选通处理技术

Time-gated processing of pulse laser ranging echo signal

应用光学. 2020, 41(6): 1284–1288 <https://doi.org/10.5768/JAO202041.0607002>

高精度多脉冲激光测距回波检测技术

High precision multi-pulse laser ranging echo detection technology

应用光学. 2018, 39(1): 135–139 <https://doi.org/10.5768/JAO201839.0107001>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

文章编号: 1002-2082 (2023) 06-1157-10

超短激光脉冲测量研究进展

黄沛¹, 袁浩^{1,2}, 夏宇峰^{1,2}, 曹华保^{1,2}, 王向林^{1,2}, 王虎山^{1,2},
徐鹏^{1,2}, 侯洵¹, 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, 陕西 西安 710119; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 超短激光脉冲作为产生阿秒激光与探索物质微观世界的重要工具, 其时间特性的精确测量尤为重要。介绍了几种少周期激光脉冲的产生以及常用的表征技术, 并将表征技术在广义上分为频域测量与时域测量两大类。在频域测量中, 通过测量非线性过程产生的光谱信息来反演重构超短激光脉冲的包络及相位; 在时域测量中, 利用“超快门开关”直接对脉冲的光场信息进行采样, 从而获取时间特性。两类技术及应用场景上各有侧重, 频域测量因其装置简便快捷而被广泛应用于快速表征的实验场景中, 而时域采样则因为可以直接获得光电场信息, 常用于与光电场直接相关的超快物理实验。

关键词: 超短激光脉冲; 脉冲表征; 频域测量; 时域采样

中图分类号: TN24; O403

文献标志码: A

DOI: 10.5768/JAO202344.0610001

Research progress of ultra-short laser pulse characterization

HUANG Pei¹, YUAN Hao^{1,2}, XIA Yufeng^{1,2}, CAO Huabao^{1,2}, WANG Xianglin^{1,2},
WANG Hushan^{1,2}, XU Peng^{1,2}, HOU Xun¹, FU Yuxi^{1,2}

(1. Center for Attosecond Science and Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: As an essential tool for generating attosecond lasers and exploring the microcosmic world of materials, the precise measurement of the temporal profile of ultra-short laser pulses is significant. Several methods for the generation of few-cycle laser pulses and widely employed characterization techniques were reviewed. The characterization techniques were generally classified into two major categories: frequency domain and time domain measurement. In the frequency domain, the envelope and phase of ultra-short pulses were reconstructed through the measurement of the spectral information generated by nonlinear processes. In the time domain, the temporal profile of the pulse was obtained by directly sampling the optical field information using the ultrafast gate. These two types of techniques have distinct emphases in different application scenarios. The frequency domain measurement is widely employed in fast characterization experiments due to its simplicity and convenience, while the time domain sampling is commonly used in ultrafast physics experiments that are directly associated with the optical field, as it allows for the direct acquisition of photoelectric field information.

Key words: ultra-short laser pulse; pulse characterization; time domain sampling; frequency domain measurement

收稿日期: 2023-09-19; 修回日期: 2023-09-26

基金项目: 国家自然科学基金 (12104501, 61690222, 62175256, 92050107); 国家重点研发计划 (2022YFE0111500); 陕西省自然科学基金基础研究项目 (2019JCW-03)

作者简介: 黄沛 (1991—), 男, 博士, 特别研究助理, 主要从事阿秒激光脉冲产生与测量研究。E-mail: huangpei@opt.ac.cn

通信作者: 付玉喜 (1981—), 男, 博士, 研究员, 主要从事阿秒驱动源与阿秒光源建设研究。E-mail: fuyuxi@opt.ac.cn

引言

随着激光技术的发展,超短激光的脉冲宽度越来越窄,利用非线性展宽与压缩技术,可以将激光脉冲缩短至单周期甚至亚周期(光周期=波长/光速,为光电场的振荡周期,比如中心波长 600 nm 的激光,其 1 个光学周期为 2 fs),为阿秒激光的产生提供优质驱动源^[1-4],并为光场调控原子、分子以及固体材料中的超快动力学^[5-7]提供全新的技术手段,用以观测电磁^[8]或电荷^[9]转移等微观领域最基本的物理现象。其中空芯光纤系统^[10](hollow-core fiber)与固体薄片组^[11](multiple-plates continuum)后压缩技术常用来产生百微焦以上的可见光与近红外波段的少周期激光脉冲;在中红外波段,通常使用光参量放大技术^[12](optical parametric amplification, OPA)来获得少周期脉冲;上述方案结合分波段压缩的光波合成技术^[13],可将激光脉冲压缩至小于 1 个光周期,同时也可以维持载波包络相位(carrier envelope phase, CEP)的稳定。如此短的激光脉冲,已经远超电子响应速度的极限,目前尚未有可以直接测量其时间特性的电子仪器,通常采用自参考或已知参考脉冲互相关的间接测量手段。

超短脉冲测量作为超快激光的重要方向一直在迭代更新,表征超短激光脉冲时域信息最为主要的 2 个参数为脉冲包络与脉冲光电场,如图 1 所示。指示线所标分别为包络和光电场,两者峰值之间的相位差为载波包络相位,包络平方的半高全宽即为脉宽。

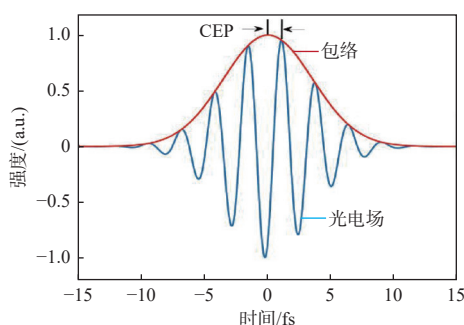


图 1 超短激光脉冲(800 nm、5 fs)的电场、包络和载波包络相位

Fig. 1 Electric field, field envelope and carrier-envelope phase of ultra-short laser pulse (5 fs pulse with 800 nm central wavelength)

最初用于超短激光脉冲时域测量自相关法^[14,15],只能获得脉冲宽度,没有脉冲包络形貌信息;而后发展的可用于测量脉冲相位信息的频率分辨光学

开关法^[16](frequency resolved optical gating, FROG)与自参考光谱相干电场重建法^[17](self-referencing spectral phase interferometry for direct electric reconstruction, SPIDER),可以通过反演重构出脉冲包络,但难以直接获得光电场;而用于阿秒激光脉冲测量的阿秒条纹相机^[18](attosecond streak camera),除了可测量阿秒脉冲以外,还可以直接采样获得驱动光的光电场。

随着技术的发展,测量精度越来越精确,表征参数也越来越详细。本文将超短激光脉冲测量的常用技术分为频域测量与时域测量两大类,并主要介绍少周期脉冲测量的方法。在频域测量方法中,超短脉冲的脉宽及相位是通过测量非线性过程的光谱信息来间接获得。将主要介绍 FROG 和 SPIDER,此类方法装置简单、易于搭建,但通常需要反演重构算法或精准的光路校正,并且难以直接获得光电场。在时域测量方法中,利用 1 个“超快门开关”脉冲直接扫描待测脉冲,以此来获得时间信息。将主要介绍阿秒条纹相机技术^[18]、微扰隧穿电离的电场采样法^[19](tunneling ionization with a perturbation for the time-domain observation of an electric field, TIPTOE)以及微扰三阶的全光采样法^[20,21],此类方法可以直接获得光电场,但通常需要利用高阶非线性过程,对“门开关”脉冲的光强或光子能量有一定要求。

1 超短激光脉冲产生

完整的光脉冲可以通过时域或者频域来描述,两者满足傅里叶变换关系,对于单周期的激光脉冲,其频谱覆盖范围要达到 1 个倍频程,所以要获得少周期的激光脉冲,前提是获得相干的超连续光谱。空芯光纤与固体薄片组技术可通过自相位调制以及自陡峭效应来展宽光谱,常用在可见光与近红外波段的少周期脉冲产生,光参量放大技术通过参量过程来获得波长转换的超连续谱,常用于中红外波段的少周期脉冲产生。上述展宽后的光谱利用色散元器件可将脉冲压缩至接近单周期,然而现有的压缩元器件无法覆盖倍频程的光谱,结合分波段压缩的光波合成技术,可进一步将脉冲压缩至亚周期。

空芯光纤主要利用激光在气体介质中的自相位调制效应,通过将激光限制在光纤芯径内,增长与气体介质相互作用的距离来展宽光谱,气体介质通常使用氦、氖、氩等惰性气体,典型的空芯光

纤光路图如图2所示。

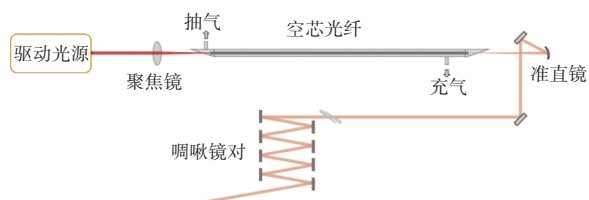


图2 典型的空芯光纤光路图

Fig. 2 Optical path diagram of typical hollow-core fiber

最早于1996年, NISOLI M等人在实验上获得了650 nm~825 nm、0.24 mJ和10 fs的高能量少周期激光脉冲输出, 空芯光纤为熔融石英材质的毛细管, 长度为70 cm、内径为140 μm , 并采用静态充气的方式在整个芯径内充满氩气^[10]。此后这项技术迅速发展, 利用各种改进的技术实现了更短脉冲、更高能量的激光脉冲输出, 成为了各个阿秒激光研究团队中的必备技能。2003年, 瑞士的SCHENKEL B等人利用联级空芯光纤来展宽光谱, 将参数为25 fs、0.5 mJ和1 kHz的驱动光耦合至第1根带有空间梯度的空芯光纤中, 光纤的参数为60 cm长, 入射端的内径为500 μm , 出射端的内径为300 μm , 并利用啁啾镜压缩至10 fs后再次耦合至内径300 μm 的空芯光纤中, 压缩之后最终获得530 nm~1 030 nm、3.8 fs的近单周期激光脉冲输出, 但能量仅为15 μJ ^[22]。2007年, MATSUBARA E等人将800 nm与其倍频光同时注入到长度37 cm、内径140 μm 的空芯光纤中, 利用自相位调制与诱导相位调制效应, 直接将光谱展宽至350 nm~1 050 nm, 并压缩至2.6 fs, 然而能量仅为3.6 μJ ^[23]。

上述空芯光纤技术尽管能产生少周期的脉冲, 但其能够耦合的入射激光能量限定在毫焦耳量级以下, 原因是由于光纤入射端会产生电离以及自聚焦效应, 从而影响到光纤的耦合。为了产生毫焦量级以上的超短激光脉冲, 2005年SUDA A等人提出差分充气的方法, 将入射端抽成近真空状态, 并将8.5 mJ的激光脉冲耦合到250 μm 内径以及2.2 m长的空芯光纤中。通过压缩, 最终获得了10 fs、5 mJ的激光脉冲, 此方案极大程度地提升了空芯光纤能承受的最大光强^[24]。该团队后续又进一步将27 fs、12 mJ的激光脉冲利用此方案, 最终输出5 mJ、5 fs的超强超短激光^[25]。上述方案的空芯光纤均为毛细管的棒状结构, 最长不超过1.5 m, 效率为50%左右, 更长的光纤容易引起弯曲形变, 使其损耗增加并且导致多模式混合, 限制了脉冲能量的进一步提升。可拉伸式空芯光纤的应

用^[26], 有效地解决了长度问题, 利用薄壁柔性纤维来替代刚性毛细管, 可将长度延伸至5 m及以上。此外, 近年来提出使用分子气体来替代惰性气体^[27], 利用分子振动与转动的场致拉伸以及拉曼效应来展宽光谱, 进一步提升压缩比, 可直接将百飞秒量级的长脉冲压缩至少周期。空芯光纤技术在获得高能量的超短脉冲上取得了巨大的成功, 并已经被广泛应用到紫外至中红外波段的高能量少周期脉冲产生^[28,29]。结合基于啁啾镜的脉宽压缩技术, 可获得近单周期的激光脉冲, 但由于啁啾镜的工艺难度, 无法精确补偿倍频程以上的光谱色散。WIRTH A等人在2011年将空芯光纤的光谱分为3个通道分别进行压缩后再合束, 获得了脉宽仅为2.1 fs、小于1个光周期的激光脉冲^[13]。2016年, 他们另外加入1路紫外波段进行4路光波合成, 直接压缩至975 as^[30], 首次获得可见光波段的阿秒脉冲。2023年, TRUONG TC等人将空芯光纤与相干合成技术应用到中红外波段, 并使用分子气体, 直接将中心波长1.03 μm 、280 fs的脉冲展宽至1 μm ~2 μm , 并在中红外波段最终分波段压缩至7 fs^[31]。光波合成技术的难点在于精确的相位控制与稳定, 可用于光波合成系统中的锁定方法有光谱干涉法^[13]、平衡光学互相关^[32]以及改进的 f -2 f 方案^[33]。

另一种后压缩技术为固体薄片组, 利用多片固体薄片产生自相位调制效应, 结合自聚焦与自散焦的平衡来维持光束的稳定, 展宽光谱的同时, 避免电离成丝对固体介质的破坏。典型的固体薄片组光路图如图3所示。

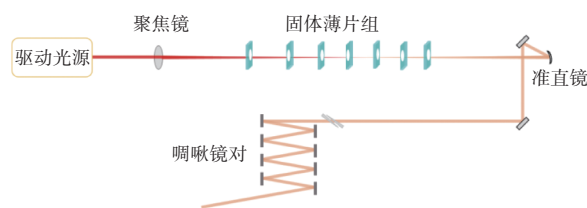


图3 典型的固体薄片组光路图

Fig. 3 Optical path diagram of typical solid sheet group

在实验上, LUCH等人最早于2014年将中心波长为800 nm、25 fs和140 μJ 的激光脉冲直接聚焦到4片的0.1 mm厚的熔石英片中, 其中薄片按布鲁斯特角摆放, 目的是为了减少材料表面反射的损耗, 最终获得了450 nm~980 nm的超连续谱, 但能量仅为76 μJ ^[11]。之后此团队进一步将光谱展宽至350 nm~1 050 nm, 用啁啾镜压缩至3.6 fs, 并应用到阿秒脉冲产生实验中^[34]。2015年, HE P等人将30 fs、0.8 mJ的激光注入到7片100 μm 厚的

熔石英薄片,最终压缩之后获得 0.68 mJ、5.4 fs 的少周期脉冲,效率可达 85%^[35]。相比于空芯光纤,固体介质能承受的光强更低,难以应用到毫焦以上。但固体薄片组效率更高,可达到 80%,并且不需要与激光进行精确的耦合,光路抖动的容忍度更高,并且整体光路更加简易,因此被广泛应用到低光强下的紫外到近红外少周期脉冲产生,用来替代空芯光纤系统。

光参量放大技术可以转换波长,通过差频过程获得特定波段的闲频光与信号光,常用于产生中红外波段的光源,其中光参量啁啾脉冲放大技术^[36](optical parametric chirped-pulse amplification, OPCPA)将种子光进行时域展宽后,可以获得数十毫焦的中红外光源,而改进的双啁啾光参量放大技术^[37](dual-chirped optical parametric amplification, DC-OPA),可以进一步提升中红外光源能量,适用于宽光谱泵浦光的光参量放大。三种方案的原理示意图及区别如图 4 所示,其中 OPA 对种子光与泵光不做特殊处理,最终获得的信号光与闲频光能量通常在毫焦量级以下;OPCPA 对种子光进行啁啾展宽,使其作用到非线性晶体上的峰值功率降低,在参量过程后再进行补偿;DC-OPA 通过对泵浦光和种子光同时啁啾展宽后再进行参量放大,泵光与种子光脉宽的增加有利于提升脉冲能量的吞吐量,提高信号光输出脉冲能量。

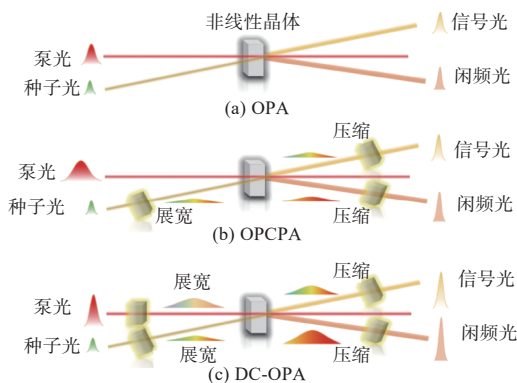


图 4 OPA、OPCPA 以及 DC-OPA 原理示意图

Fig. 4 Schematic diagram of OPA, OPCPA and DC-OPA

此外,通过优化泵浦光与信号光的啁啾关系,有利于增加信号光的增益带宽,可获得更短的信号光脉冲。利用 DC-OPA 方案,在 1.1 μm~2.2 μm 波段,实现了 9.2 fs 接近单周期的激光脉冲输出^[38],并进一步实现了百毫焦以上、小于 2 个光学周期的超短超强激光脉冲输出^[39],首次在中红外波段突破 100 mJ。

2 超短激光脉冲频域测量

表征超短脉冲的特性,其时域脉冲波形尤为重要,然而对于飞秒脉冲,其时间宽度的测量由于没有更快的参照物,所以只能使用自参考或已知脉冲的互相关,用激光自身或更快的激光来测量。最初使用的时域自相关技术^[14,15],将时间信息转换成空间信息来进行测量,可获得的脉冲宽度与啁啾,而后发展的频域测量方法,可进一步获得相位信息,能够更准确地获得脉冲包络的形貌。频域测量常用的方法包括 FROG、SPIDER 与色散扫描法^[40](dispersion scan, D-Scan)等。

其中, FROG 是由 KANE D J 等人在 1993 年提出,在自相关的基础上,加入迭代算法来获取光谱结构以及相位分布等信息,最后得到脉冲包络波形的方法^[16],典型的 FROG 光路示意图如图 5 所示。

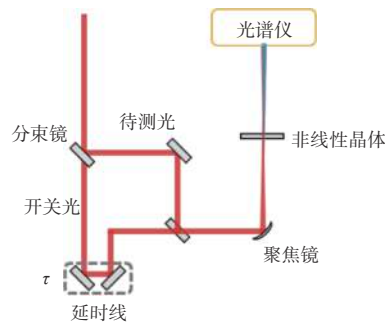


图 5 典型的 FROG 光路图

Fig. 5 Optical path diagram of typical FROG

FROG 通常采用自参考的方法,将激光脉冲分为两束,其中一束为待测光,另一束为开关光,扫描两束脉冲之间的相对延时,并通过非线性介质后测量每个延时点下信号光的光谱强度,获得 FROG 的原始追迹图,再利用反迭代算法重构出脉冲包络、光谱结构、相位等信息。FROG 装置通常采用二阶与三阶的非线性过程,包括利用两束脉冲偏振垂直的偏振光开关法^[41]、利用倍频产生的二次谐波法^[42]、自衍射法^[16,42]、利用三倍频产生的三次谐波法^[43]以及相位自匹配的瞬态光栅法^[44]等。

尽管不同类型的 FROG 产生信号光的非线性过程不一致,但其基础反演重构算法在原理上殊途同归,激光脉冲在时域上的表达式为

$$E(t) = \text{Re} \left\{ \sqrt{I(t)} \exp(i\omega_0 t - i\varphi(t)) \right\} \quad (1)$$

待测脉冲与开关光在非线性介质中相互作用获得信号光,在时域上可表示为

$$A(t-\tau)=\int_{-\infty}^{\infty}I(t)I(t-\tau)dt \tag{2}$$

将信号光在时域上的表达式进行傅里叶变换到频域上为

$$S(\omega,\tau)=\left|\int_{-\infty}^{\infty}E(t)g(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt\right|^2 \tag{3}$$

其中式(3)为信号光函数, $g(t-\tau)$ 为开关光函数,不同非线性过程的 FROG,其开关光函数不一致,表 1 列出了几种常用的 FROG 开关光与信号光函数。式(2)与式(3)作为 2 个约束条件,来对 FROG 测量数据进行反演迭代,最终重构出待测脉冲的光谱、相位以及脉宽等信息。

表 1 FROG 常用的光开关与信号光函数
Table 1 Optical gating functions and signal light functions of different types of FROG

FROG类型	$g(t-\tau)$	$S(\omega,\tau)$
PG-FROG	$ E(t-\tau) ^2$	$ \int_{-\infty}^{\infty}E(t) E(t-\tau) ^2\exp(-i\omega t)dt ^2$
SHG-FROG	$E(t-\tau)$	$ \int_{-\infty}^{\infty}E(t)E(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt ^2$
SD-FROG	$E(t)E(t-\tau)^*$	$ \int_{-\infty}^{\infty}E(t)^2E^*(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt ^2$
THG-FROG	$E(t)E(t-\tau)$	$ \int_{-\infty}^{\infty}E^2(t)E(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt ^2$
TG-FROG	$E(t)^2E^*(t-\tau)$	$ \int_{-\infty}^{\infty}E(t)^3E^*(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt ^2$

另一种频域测量方法 SPIDER 是由 IACONIS C 等人在 1998 年提出,是一种基于光谱干涉的自参考测量方法^[17]。在 FROG 中,测量每个光谱成分的强度随延时的变化;而 SPIDER 是测量光谱的干涉图样,其原理是将激光脉冲分为两束,其中一束通过一个线性时域相位调制器引入一个时间延时 τ ,形成两束具有固定延时的相同脉冲,另一束通过一个线性光谱相位调制器引入一个频移 Ω ,相互作用之后,两束脉冲之间的相对相位可表示为

$$\theta(\omega)=\varphi(\omega)-\varphi(\omega-\Omega)-\omega\tau \tag{4}$$

两束脉冲叠加后的光谱可表示为

$$S(\omega)=|E(\omega)|^2+|E(\omega+\Omega)|^2+2|E(\omega)E(\omega+\Omega)|\times \cos[\varphi(\omega)-\varphi(\omega-\Omega)-\omega\tau] \tag{5}$$

式中: $E(\omega)$ 是待测脉冲,等式右边前两项为直流项,并不包含相位信息,最后一项为干涉项,可以提取出待测脉冲的相位信息。通过调节延时与频移,并提取出光谱干涉图样中的相对相位,便可直接得到脉冲的相位信息 $\varphi(\omega)$,再结合独立测量的光谱,通过傅里叶变换便可得出脉冲包络。SPIDER 需要引入频移与延时,典型的 SPIDER 装置需要将待测激光分为 3 路,如图 6 所示,其中 1 路通过频移器来获得频移,通常使用 1 块色散元器件引入啾啾,将脉宽展宽至数皮秒;另外 2 路通过迈克尔逊

干涉仪引入延时,获得两束时间间隔固定的相同脉冲。三束光合束后通过倍频晶体产生光谱干涉,干涉图样经过通过傅里叶变换等计算,便可获得脉冲的相位信息。与 FROG 相比,除延时外,SPIDER 需要额外引入频移,实验装置稍微复杂,但 SPIDER 不需要反演迭代,灵敏度更高。

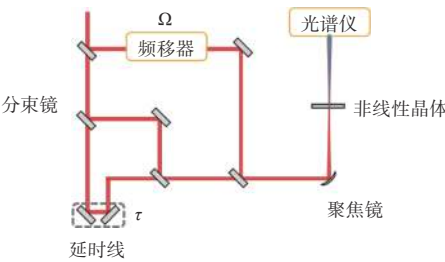


图 6 典型的 SPIDER 光路图

Fig. 6 Optical path diagram of typical SPIDER

频域测量方法除了常用的 FROG 与 SPIDER 以外,还有一些方法在不同的应用场景中得到了很好的发展,包括: D-SCAN 技术采用共线的方法,通过测量激光脉冲在不同色散下非线性效应后的光谱强度,来反演相位信息,重构出脉冲包络信息;傅里叶光谱干涉法^[45](Fourier transform spectral interferometry, FTSI)利用已知的参考脉冲来对待测脉冲进行表征,通过两束脉冲之间的互相关产生光谱干涉进而反演出待测脉冲的包络信息;多光子脉冲内干扰相位扫描法^[46](multiphoton intrapulse interference phase scan, MIIPS)采用非干涉单光束的光路,通过已知的脉冲整形器来扫描待测脉冲,获取相位信息来反演脉冲包络。频域测量的方法通常采用二阶或者三阶非线性过程,容易实现,光路简易。

3 超短激光脉冲时域采样

随着脉冲宽度越来越窄,在一些与物质相互作用的高阶非线性过程中,脉冲的光电场直接决定了物理现象^[1-9]。而频域测量的方法,缺乏载波包络相位的信息,难以直接获得光电场。在时域,利用一个超快的门开关,对待测脉冲进行采样,可以直接获得完整的光电场。近年来,时域采样的方法发展迅速,这里将主要介绍阿秒条纹相机技术、微扰隧穿电离的电场采样法(TIPTOE)以及微扰三阶非线性的全光采样法。

其中,阿秒条纹相机技术最初由 ITATANI J 等人于 2002 年在实验中实现,依赖驱动光与其产

生的极紫外到软 X 射线波段阿秒脉冲,其原理如图 7 所示,将阿秒激光作为 1 个超快门开关,与驱动光同时作用于惰性气体,阿秒激光由于具有高光子能量,可以将气体介质直接单光子电离,激发出电子,电子动量会受到驱动光的调制,形成新的动量分布,与电离时刻驱动光的电场矢量势直接相关,通过扫描驱动光与阿秒激光之间的相对延时,得到不同电离时刻电子的最终能量分布,通过微通道板(microchannel plate, MCP)来采集电子能谱,将时间信息映射到电子能量来进行测量^[18]。

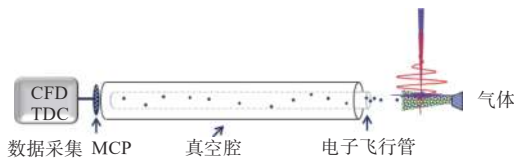


图 7 阿秒条纹相机原理图

Fig. 7 Schematic diagram of attosecond streak camera

阿秒条纹相机最主要目的是为了测量阿秒激光,通过频率分辨光学门重建阿秒脉冲法可以重构出阿秒激光的脉冲包络,同时可以直接获得驱动光的光电场。此外,利用阿秒激光作为超快门开关的采样方法还包括拍赫兹光学示波器^[47]、任意波形阿秒采样法^[48]等,通过采样光谱来替代电子能谱,降低了装置的复杂性,但由于阿秒激光位于极紫外到软 X 射线波段,容易被吸收,所以这类装置需要搭建真空系统。

2018 年, PARK SB 等人提出的 TIPTOE 技术^[19],利用空气中的电离效应,引入 1 个微扰,便可对脉冲进行采样,其实验方案是将待测脉冲分成强弱两束,强光将空气隧穿电离,弱光对电离率进行微扰,用金属板电极采集电信号,通过测量不同相对延时下的电信号强度,获得的调制曲线便可反映出待测脉冲的时域信息,这种方法可直接在空气中实现,不需要复杂的真空系统。其理论原理是瞬时电离率与光强的 n 次方成正比, $w(E) \propto I^n = E^{2n}$, 其中 n 为非线性系数,是空气中电离率随光强变化曲线的斜率,对于不同波长, n 的数值不一样。引入 1 个微扰光对电离率进行调制,则总的电离率 $N(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} [E_F(t-\tau) + E_P(t)]^{2n} dt$, 展开之后获得调制项:

$$\delta_N^{(1)}(\tau) \propto 2nr \int_{-\infty}^{\infty} E_F(t-\tau)^{2n-1} E_P(t) dt \quad (6)$$

式中: 强光 $E_F(t-\tau)^{2n-1}$ 可以作为超快门开关来对弱光进行采样。这种方法的门开关脉冲与待测脉冲

只有强度上的区别,弱光小于强光的 1%, 在实验上容易实现,但需要加入 1 路倍频信号来确定门脉冲的 CEP, 才能实现对弱脉冲的光电场直接测量。并且,将空气电离对光强的要求比较高,需要达到 10 TW/cm^2 。基于 TIPTOE 技术,后续开发了在气体^[49]与固体介质^[50]中利用荧光来替代电信号的全光采样方法,将实验装置进一步简化,并且固体中产生荧光的光强要求可以降低一个数量级。除此之外,无需在真空系统中的采样方法还包括: 在固体^[51]与气体^[52]介质中利用门脉冲与待测脉冲偏振垂直的非线性光电导采样法; 用短脉冲测量长脉冲的飞秒条纹技术^[53]; 用于弱光电场测量的片上采样^[54]; 由多光子激发导致折射率变化的全光谱测量^[55]; 常用于太赫兹波段^[56]并已延伸至可见光波段测量^[57]的光电采样技术等。以上采样方法都需要扫描门脉冲与待测脉冲之间的相对延时, 2022 年, LIU Y Y 等人提出用于中红外波段的片上单发测量光电场技术^[58], 将强弱两束脉冲直接作用于硅基芯片上, 利用非共线的方法, 将时间信息映射到空间, 可实现超短激光脉冲光电场的直接单发测量。

在时域上的采样技术通常采用电离、多光子效应等高阶非线性过程, 对门脉冲的光强或光子能量要求比较高, 测量光路相比于频域测量方法较为复杂。最近提出的微扰三阶非线性全光采样方法^[20,21], 结合频域测量的简易以及时域测量可获得光电场的优点, 已被应用到可见到中红外波段。其原理是三阶非线性过程产生的信号光强正比于电场的 6 次方, 引入强光与弱光, 强光产生三阶效应, 弱光对其产生微扰, 通过测量不同相对延时下三阶效应产生的光强变化, 可获得弱光的时域信息。在此方案中, 三阶极化率正比于电场的三次方:

$$P_3(t) \propto E^3(t) = \frac{1}{2}(\tilde{E}(t) + \tilde{E}^*(t))^3 = \frac{1}{2}\tilde{E}^3(t) + \frac{3}{2}|\tilde{E}(t)|^2\tilde{E}(t) + c.c \quad (7)$$

式中: 右边第一项为三倍频效应; 第二项为自相位调制、瞬态光栅、自衍射等效应, 都正比电场的三次方, 引入 1 个微扰电场, 并对获得的信号光光强进行展宽后:

$$I(\tau) \propto \left| \int [E_F(t) + E_P(t-\tau)]^3 dt \right|^2 = \int E_F^6(t-\tau) dt + 6 \int E_F^5(t) E_P(t-\tau) dt + \dots \quad (8)$$

式中: $E_F(t)$ 与 $E_P(t)$ 分别为强光与弱光, 右边第一项

为常数项,第二项为微扰脉冲引起的调制项,调制项便包含了弱光的光电场信息,单独提出可以表示为

$$\delta(\tau) \propto \int E_F^5(t) E_P(t-\tau) dt \quad (9)$$

强光 $E_F^5(t)$ 可以作为一个超快门开关对微扰脉冲进行采样。实现强光与弱光的实验光路如图8所示,利用1对尖劈进行分光与合束,反射1路为微扰光,透射1路为强光,合束后的光强比小于1%,并可通过微调尖劈对的角度来调整光强。此外,强光通过由压电陶瓷组成的延时器件来引入延时。合束后的激光通过导光镜,可以进行不同的三阶非线性过程采样测量。

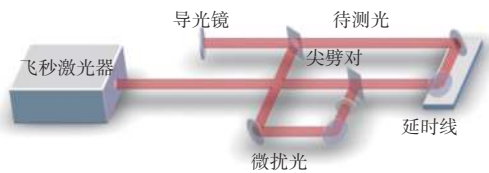


图8 微扰三阶非线性全光采样装置示意图

Fig. 8 Schematic diagram of all-optical sampling device based on third-order process with perturbation

在实验中采用了三倍频^[21]与瞬态光栅^[20]作为三阶非线性效应进行测量,其中三倍频是将激光聚焦到空气中直接产生,其优势在于空气相比于固体介质引入的色散要少3个数量级;此外,三倍频可以将波长转换至1/3,使用可见光的探测元器件便可测量中红外波段激光,有利于长波长脉冲的测量;并且无需制备特殊的非线性介质。而瞬态光栅效应的优势则在于,其光强要求只需要0.1 TW/cm²,相比于以上介绍的各种采样方案,少1个数量级以上;并且,采用box-car的结构^[21,59],满足相位自匹配,能测量很宽的带宽;此外,信号光与带测光波段一致,有利于紫外、可见光波段的测量。

在实验中,利用上述两种效应准确地测量了近红外的多周期脉冲(800 nm, 25 fs),以及可见光^[20](600 nm~1 000 nm, 7.2 fs)和中红外^[21](14 300 nm~2 200 nm, 15.3 fs)波段的少周期脉冲。图9展示了在中红外波段的少周期激光测量结果,其中图9(a)为测量的信号光强度随延时变化的原始调制曲线,通过滤波后获得图9(b),再进行傅里叶变换后获得光谱以及光谱相位,如图9(c)所示,与光谱仪(灰色阴影)直接测量的光谱十分吻合,验证了测量的准确性。进一步通过傅里叶逆变换可获得脉冲包络的信息,如图9(d)所示,如果强光一路的载

波包络相位为零,图9(b)便可直接表示为弱光的光电场。基于微扰三阶非线性的全光采样技术利用与频域测量同样简便的光路,便可完成波段覆盖从紫外至中红外、脉宽短至亚周期的激光脉冲光电场测量,是一种简易、稳定、数据处理快的超短激光脉冲全光场测量方法。

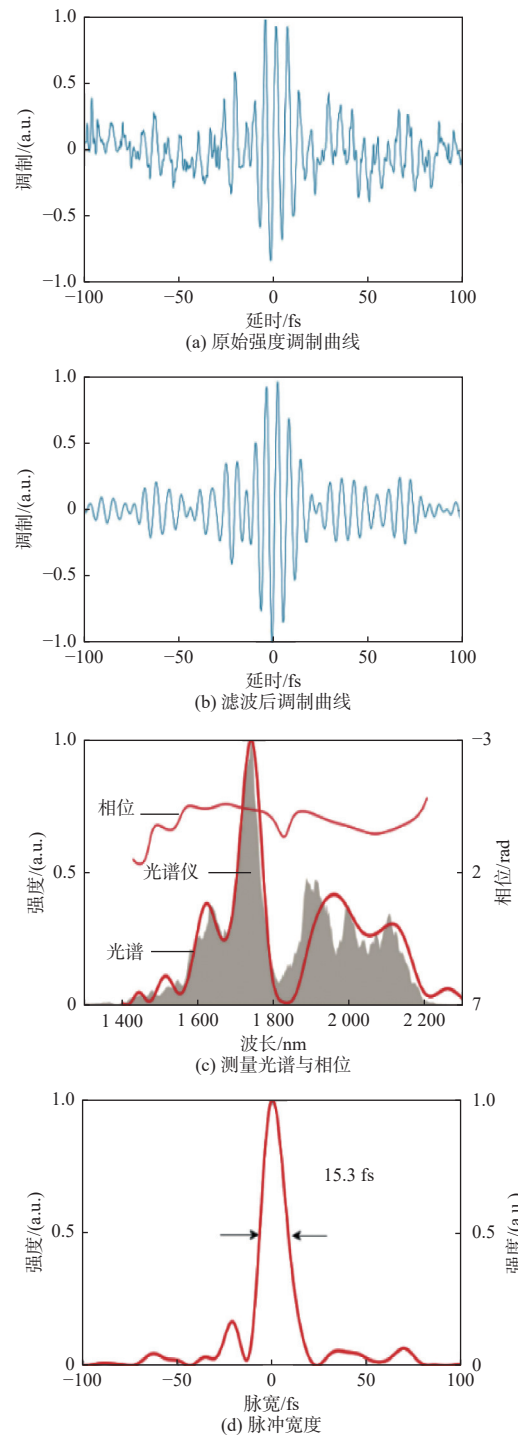


图9 中红外少周期脉冲测量结果

Fig. 9 Measurement results of mid-infrared few-cycle pulse

4 结论与展望

如何实现更强更短的脉冲一直是激光发展的重要方向,现有的技术可以获得百毫焦以上的少周期脉冲,并伴随着产生技术的发展,脉冲的表征手段也日益全面,为阿秒科学、强场物理、微观动力学等领域的研究提供全新驱动源与测量方法。本文描述了几种常用的高能量超短激光脉冲产生与表征方法,首先介绍了百微焦耳以上并小于 3 个光学周期的超短激光脉冲产生技术;然后在测量方面,分为频域与时域测量分别进行介绍,对比了两类技术的优劣以及不同的应用场景,时域测量信息更为全面,但装置较为复杂;最后着重介绍了基于微扰的三阶非线性全光采样方法,可利用简易装置实现超短激光脉冲时域信息的全面测量。

超短激光脉冲时域采样目前在紫外到太赫兹波段已经实现,能够直接获得光电场,具有高灵敏、高分辨、宽带宽等特点,为亚周期光与物质相互作用、光场驱动非线性等超快过程提供了新的检测手段。但难以应用到极紫外至软 X 射线波段的阿秒激光,主要原因是目前阿秒光源的脉冲能量太弱,不足以产生非线性效应,难以获得更短的“门开关”脉冲,所以阿秒激光通常采用频域测量再反演重构的方法。伴随着阿秒技术的发展,高能量阿秒激光已经开始逐步应用到阿秒泵浦-阿秒探测的实验中,利用时域采样来获得阿秒脉冲光电场的技术将会有所突破。

参考文献:

- [1] HENTSCHEL M, KIENBERGER R, SPIELMANN C, et al. Attosecond metrology[J]. *Nature*, 2001, 414(6863): 509-513.
- [2] XUE B, TAMARU Y, FU Y X, et al. A custom-tailored multi-TW optical electric field for gigawatt soft-X-ray isolated attosecond pulses[J]. *Ultrafast Science*, 2021, 2021: 9828026.
- [3] ZHAN M J, YE P, TENG H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV[J]. *Chinese Physics Letters*, 2013, 30(9): 093201.
- [4] 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[J]. *中国激光*, 2020, 47(4): 321-324.
WANG Xianglin, XU Peng, LI Jie, et al. Isolated attosecond pulse with 159 as duration measured by home built attosecond streaking camera[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(4): 321-324.
- [5] LI W, ZHOU X B, LOCK R, et al. Time-resolved dynamics in N_2O_4 probed using high harmonic generation[J]. *Science*, 2008, 322(5905): 1207-1211.
- [6] LAKHOTIA H, KIM H Y, ZHAN M, et al. Laser picoscopy of valence electrons in solids[J]. *Nature*, 2020, 583(7814): 55-59.
- [7] GARG M, ZHAN M, LUU T T, et al. Multi-petahertz electronic metrology[J]. *Nature*, 2016, 538(7625): 359-363.
- [8] SIEGRIST F, GESSNER J A, OSSIANDER M, et al. Light-wave dynamic control of magnetism[J]. *Nature*, 2019, 571(7764): 240-244.
- [9] GUO Z N, GE P P, FANG Y Q, et al. Probing molecular frame Wigner time delay and electron wavepacket phase structure of CO molecule[J]. *Ultrafast Science*, 2022, 2022: 9802917.
- [10] NISOLI M, DE SILVESTRI S, SVELTO O. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 68(20): 2793-2795.
- [11] LU C H, TSOU Y J, CHEN H Y, et al. Generation of intense supercontinuum in condensed media[J]. *Optica*, 2014, 1(6): 400.
- [12] CERULLO G, DE SILVESTRI S. Ultrafast optical parametric amplifiers[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2003, 74(1): 1-18.
- [13] WIRTH A, HASSAN M T, GRGURAŠ I, et al. Synthesized light transients[J]. *Science*, 2011, 334(6053): 195-200.
- [14] SALA K, KENNEY-WALLACE G, HALL G. CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1980, 16(9): 990-996.
- [15] DIELS J C M, FONTAINE J J, MCMICHAEL I C, et al. Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy[J]. *Applied Optics*, 1985, 24(9): 1270-1282.
- [16] KANE D J, TREBINO R. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1993, 29(2): 571-579.
- [17] IACONIS C, WALMSLEY I A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort

- optical pulses[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(10): 792-794.
- [18] ITATANI J, QUÉRÉ F, YUDIN G L, et al. Attosecond streak camera[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(17): 173903.
- [19] PARK S B, KIM K, CHO W, et al. Direct sampling of a light wave in air[J]. *Optica*, 2018, 5(4): 402.
- [20] HUANG P, YUAN H, CAO H B, et al. All-optical sampling of ultrashort laser pulses based on perturbed transient grating[J]. *Optics Letters*, 2022, 47(20): 5369-5372.
- [21] HUANG P, YUAN H, CAO H B, et al. Direct sampling of ultrashort laser pulses using third-harmonic generation with perturbation in ambient air[J]. *Optics Letters*, 2023, 48(8): 2154-2157.
- [22] SCHENKEL B, BIEGERT J, KELLER U, et al. Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(20): 1987-1989.
- [23] MATSUBARA E, YAMANE K, SEIKAWA T, et al. Generation of 2.6 fs optical pulses using induced-phase modulation in a gas-filled hollow fiber[J]. *JOSA B*, 2007, 24(4): 985-989.
- [24] SUDA A, HATAYAMA M, NAGASAKA K, et al. Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(11): 111116.
- [25] BOHMAN S, SUDA A, KANAI T, et al. Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1 kHz using hollow-fiber pulse compression[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(11): 1887-1889.
- [26] NAGY T, FORSTER M, SIMON P. Flexible hollow fiber for pulse compressors[J]. *Applied Optics*, 2008, 47(18): 3264-3268.
- [27] BEETAR J E, NRISIMHAMURTY M, TRUONG T C, et al. Multioctave supercontinuum generation and frequency conversion based on rotational nonlinearity[J]. *Science Advances*, 2020, 6(34): eabb5375.
- [28] TRAVERS J C, GRIGOROVA T F, BRAHMS C, et al. High-energy pulse self-compression and ultraviolet generation through soliton dynamics in hollow capillary fibres[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(8): 547-554.
- [29] WANG Z Y, HEUERMAN T, JENA H I, et al. Nonlinear pulse compression to sub-two-cycle, 1.3 mJ pulses at 1.9 μm wavelength with 132 W average power[J]. *Optics Letters*, 2023, 48(10): 2647.
- [30] HASSAN M T, LUU T T, MOULET A, et al. Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons[J]. *Nature*, 2016, 530(7588): 66-70.
- [31] TRUONG T C, BEETAR J E, CHINI M. Light-field synthesizer based on multidimensional solitary states in hollow-core fibers[J]. *Optics Letters*, 2023, 48(9): 2397-2400.
- [32] SCHIBLI T R, KIM J, KUZUCU O, et al. Attosecond active synchronization of passively mode-locked lasers by balanced cross correlation[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(11): 947-949.
- [33] HUANG P, FANG S B, GAO Y T, et al. Simple method for simultaneous long-term stabilization of relative timing and carrier-envelope phase in waveform synthesis[J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(3): 031102.
- [34] HUANG P C, HERNÁNDEZ-GARCÍA C, HUANG J T, et al. Polarization control of isolated high-harmonic pulses[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(6): 349-354.
- [35] HE P, LIU Y Y, ZHAO K, et al. High-efficiency supercontinuum generation in solid thin plates at 0.1 TW level[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(3): 474-477.
- [36] DENG Y P, SCHWARZ A, FATTABI H, et al. Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μm [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(23): 4973-4975.
- [37] ZHANG Q B, TAKAHASHI E J, MÜCKE O D, et al. Dual-chirped optical parametric amplification for generating few hundred mJ infrared pulses[J]. *Optics Express*, 2011, 19(8): 7190.
- [38] ISHII N, KANESHIMA K, KANAI T, et al. Generation of ultrashort intense optical pulses at 1.6 μm from a bismuth triborate-based optical parametric chirped pulse amplifier with carrier-envelope phase stabilization[J]. *Journal of Optics*, 2015, 17(9): 094001.
- [39] XU L, XUE B, ISHII N, et al. 100-mJ class, sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable dual-chirped optical parametric amplification[J]. *Optics Letters*, 2022, 47(13): 3371-3374.
- [40] MIRANDA M, ARNOLD C L, FORDELL T, et al. Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique[J]. *Optics Express*, 2012, 20(17): 18732.
- [41] KANE D J, TREBINO R. Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating[J]. *Optics Letters*, 1993, 18(10): 823-825.

- [42] PAYE J, RAMASWAMY M, FUJIMOTO J G, et al. Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation[J]. *Optics Letters*, 1993, 18(22): 1946-1948.
- [43] TSANG T, KRUMBÜGEL M A, DELONG K W, et al. Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(17): 1381-1383.
- [44] LEE D, AKTURK S, GABOLDE P, et al. Experimentally simple, extremely broadband transient-grating frequency-resolved-opticalgating arrangement[J]. *Optics Express*, 2007, 15(2): 760.
- [45] FITTINGHOFF D N, BOWIE J L, SWEETSER J N, et al. Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(12): 884-886.
- [46] LOZOVY V V, PASTIRK I, DANTUS M. Multiphoton intrapulse interference. IV. Ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation[J]. *Optics Letters*, 2004, 29(7): 775-777.
- [47] KIM K T, ZHANG C M, SHINER A D, et al. Petahertz optical oscilloscope[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(12): 958-962.
- [48] WYATT A S, WITTING T, SCHIAVI A, et al. Attosecond sampling of arbitrary optical waveforms[J]. *Optica*, 2016, 3(3): 303.
- [49] SAITO N, ISHII N, KANAI T, et al. All-optical characterization of the two-dimensional waveform and the Gouy phase of an infrared pulse based on plasma fluorescence of gas[J]. *Optics Express*, 2018, 26(19): 24591.
- [50] LIU Y Y, GHOLAM-MIRZAEI S, BEETAR J E, et al. All-optical sampling of few-cycle infrared pulses using tunneling in a solid[J]. *Photonics Research*, 2021, 9(6): 929.
- [51] SOMMER A, BOTHSCHAFTER E M, SATO S A, et al. Attosecond nonlinear polarization and light-matter energy transfer in solids[J]. *Nature*, 2016, 534(7605): 86-90.
- [52] ZIMIN D, WEIDMAN M, SCHÖTZ J, et al. Petahertz-scale nonlinear photoconductive sampling in air[J]. *Optica*, 2021, 8(5): 586.
- [53] KOROBENKO A, JOHNSTON K, KUBULLEK M, et al. Femtosecond streaking in ambient air[J]. *Optica*, 2020, 7(10): 1372.
- [54] BIONTA M R, RITZKOWSKY F, TURCHETTI M, et al. On-chip sampling of optical fields with attosecond resolution[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(6): 456-460.
- [55] HUI D D, ALQATTAN H, YAMADA S, et al. Attosecond electron motion control in dielectric[J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(1): 33-37.
- [56] MEYER K, PESSOT M, MOUROU G, et al. Subpicosecond photoconductivity overshoot in gallium arsenide observed by electro-optic sampling[J]. *Applied Physics Letters*, 1988, 53(23): 2254-2256.
- [57] RIDENTE E, MAMAIAKIN M, ALTWAIJRY N, et al. Electro-optic characterization of synthesized infrared-visible light fields[J]. *Nature Communications*, 2022, 13: 1111.
- [58] LIU Y Y, BEETAR J E, NESPER J, et al. Single-shot measurement of few-cycle optical waveforms on a chip[J]. *Nature Photonics*, 2022, 16(2): 109-112.
- [59] ECKBRETH A C. BOXCARS: crossed-beam phase-matched CARS generation in gases[J]. *Applied Physics Letters*, 1978, 32(7): 421-423.