

· 科技评述:2023年诺贝尔奖评述 ·

洞察电子运动的阿秒光脉冲

——2023年诺贝尔物理学奖评述

王兵兵 魏志义*

中国科学院物理研究所,北京 100190

[摘要] 2023年的诺贝尔物理学奖授予了美国俄亥俄州立大学的皮埃尔·阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)、德国马普量子光学研究所及慕尼黑大学的费伦茨·克劳斯(Ferenc Krausz)和瑞典隆德大学的安妮·卢利尔(Anne L'Huillier)三位教授,以表彰他们在产生阿秒光脉冲的实验方法研究中所做出的贡献。由于物质中电子运动的时间尺度就是阿秒量级,因此阿秒光源及阿秒物理打开了人们探索微观世界超快过程的大门,并给宏观物理现象的理解带来新的希望。

[关键词] 阿秒脉冲;高次谐波;三步模型;载波相位;基于双光子跃迁干涉的阿秒拍频重建技术

2023年的诺贝尔物理学奖授予了美国俄亥俄州立大学的皮埃尔·阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)、德国马普量子光学研究所及慕尼黑大学的费伦茨·克劳斯(Ferenc Krausz)和瑞典隆德大学的安妮·卢利尔(Anne L'Huillier)三位教授,以表彰他们在产生阿秒光脉冲的实验方法研究中所做出的贡献。阿秒是指持续仅1百亿亿分之一秒的时间单位,即 10^{-18} 秒。阿秒光脉冲之所以获得诺贝尔物理学奖,一个重要的原因是能够用于原子中电子动力学的研究。由于电子动力学的行为决定着物质的性能,因此,探测电子运动的超快过程是涉及物理、化学、材料及生物学等多学科的研究内容,作为研究物质结构及物质之间相互作用的重要方法,能给人们理解更深层次的物理机制提供前所未有的新手段。那么阿秒光脉冲是如何产生的?其内容有多大的意义?目前国内外的研究现状如何?未来在哪些方面可取得进一步的发展和突破?随着诺贝尔物理学奖的公布,这些问题成为了人们广泛关注的内容。

1 阿秒光脉冲产生的背景和研究过程

激光自20世纪60年代发明以来,就成为人类探索光与物质相互作用的有力工具。伴随激光强度



魏志义 中国科学院物理研究所研究员,长期从事超快激光研究。迄今发表SCI论文400余篇。曾任国际阿秒物理委员会、亚洲强激光委员会等学术机构成员。以第一完成人获国家技术发明奖二等奖等奖项。是中国科学院青年科学家奖(2001)、国家杰出青年科学基金(2002)、胡刚复物理奖(2011)获得者,先后当选美国光学学会Fellow、中国光学学会及中国光学工程学会会员。



王兵兵 中国科学院物理研究所研究员,博士生导师,中国科学院大学岗位教授。主要从事强激光场与原子分子相互作用的动力学过程研究。发表SCI论文60余篇。主要工作包括:基于非微扰量子电动力学方法,强激光场中原子和分子高阶阈上电离、非序列电离及非线性康普顿散射的频域理论,阿秒脉冲动力学等等。

的不断提高,非线性效应和非微扰理论逐渐成为原子分子光物理领域快速发展的研究方向。1979年,在法国巴黎CEA Saclay研究所工作的皮埃尔·阿戈斯蒂尼和合作者首次观察到阈上电离现象^[1],即束缚电子可以同时吸收多个光子发生电离,而不需要单光子能量大于电离阈值的现象。这一高度非线性的物理过程改写了光电效应的能量公式,也开启了强场原子分子物理的时代。

在高次谐波发现之前,实验物理基本聚焦在光电离过程。1982 年,科学家探测了 Kr 不同离子的飞行质谱。由于所用的激光强度已经达到 10^{13} 一是明显的高度非线性光学过程。1983 年,同在巴黎 CEA Saclay 研究所工作的安妮·卢利尔观察到多电子电离时离子产量的“膝盖”结构——后来被称作双电子“非序列电离”,并仔细地总结了实验结果。直到 1988 年,安妮·卢利尔除了探测离子谱之外,开始探测激发离子的荧光光谱或原子激发后的辐射跃迁光谱——即原子或离子的激发后复合跃迁光谱。因为探测到的光子数量很低,他们将气体的原子密度增加到 $10^{17} \sim 10^{18}/\text{cm}^3$ 个原子,以便测量显著的辐射信号。由于原子密度的增高,激光不再与独立原子相互作用,而是同时与很多原子相互作用。因此,在相互作用过程中会发生很多物理过程,包括激发复合过程、谐波产生以及各种其它参量过程。实验中,他们将 1 064 nm 波长的皮秒 Nd:YAG 激光聚焦到 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ 量级的强度,并通过提高原子气体密度诱发谐波产生,首次利用 Xe 和 Ar 原子获得了分别高达 21 次及 33 次的谐波谱^[2],如图 2 所示。在进一步的研究中,他们明确指出谐波谱并不依赖于原子的激发态能级,而是与原子的多光子电离相关的物理过程。

然而当时人们对高次谐波的物理机制还不是特别清晰,直到 1993 年 Kulander 团队和 Corkum 团队^[3]建立了重碰的三步模型。另外对重碰模型非常有贡献的还包括 1994 年 Lewenstein 和 Corkum 等^[4]发表的文章。该文非常系统地给出了强场近似下高次谐波理论方法,被后来的研究者广泛应用和发展。他们给出的高次谐波强场重碰模型机制也被



图 1 2023 年诺贝尔物理学奖获得者^①(从左到右) 费伦茨·克劳斯(Ferenc Krausz)、安妮·卢利尔(Anne L'Huillier)和皮埃尔·阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)

$10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$,高剥离的离子具有很明显的产出,例如需要吸收 33 个光子的双电离是需要吸收 13 个光子的单电离几率的 10%。这一结果表明这些电离过程称为三步模型,其基本过程如图 3 所示:首先,电子在激光场作用下从原子的基态电离;电离后的电子在激光场中被加速,并在场的驱动下做振荡运动;振荡的电子有一定的几率返回到母离子附近,被母离子捕获回基态,同时将电子所带有的动能以光子的形式放出,这就是高次谐波光子的辐射过程。自此高次谐波产生机制被人们广泛接受,提高高次谐波效率也通过控制和优化重碰过程的每一步入手,人们开始逐步认识和利用高次谐波,并且知道谐波发射在时间上具有阿秒的时间尺度,因此如何利用高次谐波产生阿秒光脉冲,便逐渐成为人们竞相努力的研究内容。

但实现阿秒脉冲的测量,是一件非常不容易的事情。直到 2001 年,皮埃尔·阿戈斯蒂尼和合作者^[5]提出了一种称之为“基于双光子跃迁干涉的阿秒拍频重建(RABBIT)”的技术,通过将高次谐波和基频激光同时聚焦到气体介质中,借助测量电子的电离来确定阿秒脉冲串的持续时间,证明产生了单个脉冲约为 250 阿秒的相干阿秒光脉冲串。由于阿秒脉冲串由一组间隔为驱动激光半周期、强度两边逐渐减弱的脉冲组成,因此会影响到许多实际应用的开展,如皮埃尔·阿戈斯蒂尼在实验中采用了波长 800 nm 的飞秒钛宝石激光作为驱动光源,其半周期的时间相应约为 1.35 飞秒,测量结果也反应了这

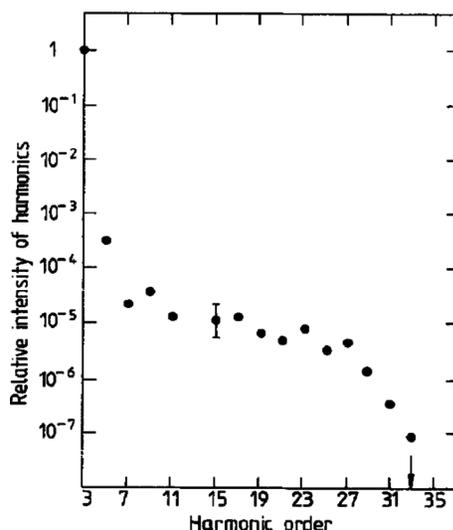


图 2 利用皮秒 Nd:YAG 激光在惰性气体中产生的高次谐波^[2]

^① 图片引自 Castelvocchi D, Sanderson K. Physicists who built ultrafast ‘attosecond’ lasers win Nobel Prize. Nature, 2023, 622: 225—227.

一特点。

如何得到与飞秒激光脉冲一样,具有振幅均匀、重复频率均匀、相互分离的单个阿秒脉冲,则需要结合类似于开关的“选通”技术。就在同一年,奥地利维也纳技术大学的费伦茨·克劳斯教授和他的团队^[6]采用脉冲宽度仅7飞秒的钛宝石放大激光作为驱动激光,通过聚焦到Ne原子产生的高次谐波,首次实现了分离的单阿秒光脉冲,测量得到了650阿秒的脉宽结果。由于7飞秒这样的少周期脉冲能够将阿秒光脉冲的产生限制在半个驱动光周期之内,相当于对振幅进行选通的一种技术,因此与气体作

用能够产生单个的阿秒脉冲。之后不久他们通过进一步对飞秒钛宝石驱动载波包络相位(Carrier Envelope Phase, CEP)的控制,同样得到了250阿秒的分离阿秒脉冲。正是由于费伦茨·克劳斯教授在包括飞秒及阿秒激光研究方面的学术成就,他与团队成员于2003年前后到了德国马普量子光学研究所,建立了新的阿秒激光研究团队。此后随着国际上对阿秒激光研究的不断重视和各种选通技术的出现,人们不断突破了最短阿秒光脉冲宽度的世界纪录,目前所见报导的最短脉冲是2017年由瑞士ETH报导的43阿秒结果^[7]。

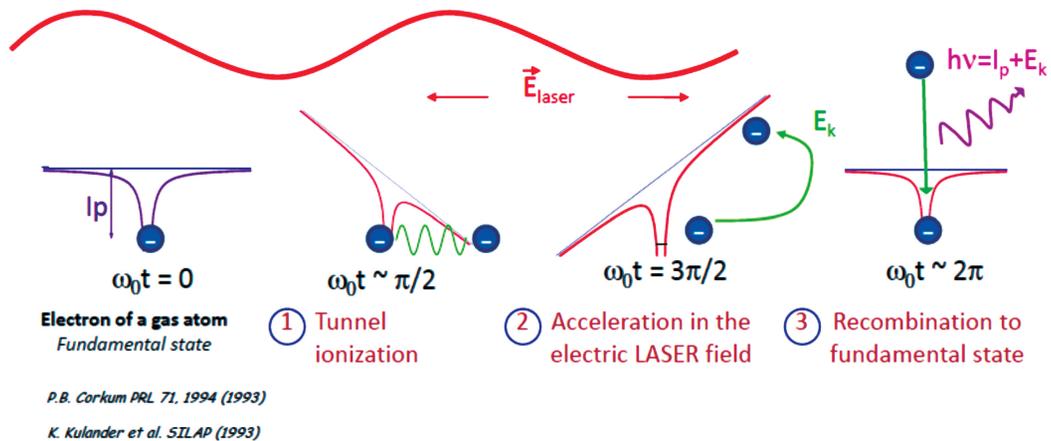


图3 高次谐波辐射的三步模型^[4]

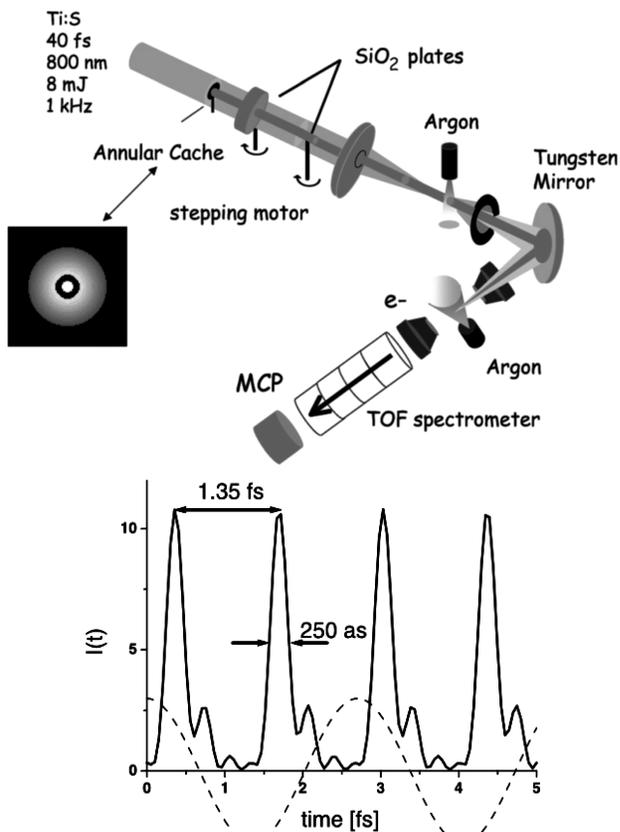


图4 阿秒脉冲串产生装置及测量结果^[5]

2 阿秒脉冲研究的意义

从高次谐波的发现和发展历史不难看出,阿秒脉冲的实现不仅是激光科学与技术的重大突破,也是强场原子分子物理领域众多科学家们多年坚持不懈努力的结果。实时观测电子动力学过程一直是人们探索物质世界的梦想,由于原子中电子绕核一周的时间是152阿秒,因此阿秒光脉冲的出现,为实现这个梦想提供了前所未有的工具。人们实现阿秒脉冲测量不久之后的2002年,该成果被Nature、Science共同评为当年的世界十大科学进展。由于电子绕原子核的运动是物质科学的基础,因此通过阿秒光脉冲对电子动力学的研究,不仅限于对于物理学的意义,其在化学、生物、医学、材料、能源、信息及成像等众多领域都表现出重要而广阔的应用前景^[8, 9]。

3 我国在该领域的研究成果、现状

正是由于阿秒科学的重要意义和广泛应用,我国从20世纪90年代就开始了相关的理论研究。在国家自然科学基金委员会、科技部及中国科学院有关项目的支持下,中国科学院物理研究所、中国科学院上

海光学精密机械研究所、中国工程物理研究院、北京大学、国防科技大学、吉林大学、华东师范大学、华中科技大学、上海交通大学等单位在高次谐波产生、阿秒物理及强场物理等研究方面取得了多项重要进展,在国际一流期刊及国际会议上发表了系列高水平的学术论文和报告,并与国外研究团队开展了密切的交流与合作。在阿秒激光的产生研究方面,物理所利用自己研制的载波包络相位控制的 5 飞秒钛宝石激光驱动原子气体,于 2012 年首次在国内实现了阿秒光脉冲的产生与测量,得到了最短脉宽 160 阿秒的单个分离阿秒光脉冲^[10]。随着人们对阿秒科学研究的不断重视及科研条件的改善,中国科学院西安光学精密机械研究所、国防科技大学、华中科技大学等单位也相继实现了单个分离阿秒脉冲的产生与测量,报导了最短脉冲小于 80 阿秒的结果。2017 年,由中国科学院物理研究所、中国科学院西安光学精密机械研究所及西安电子科技大学共同主办的第六届国际阿秒物理会议,虽然是首次在中国举办,但其借助地利优势,不仅是迄今历届会议中参会人数最多,也是阿秒世界纪录创造者与参会最多、国

际阿秒巨擘与会最多的一次会议,参会人数中约一半为国内代表,他们在国际舞台上展现了来自我国多个科研院所及大学阿秒科学研究的重要成果及发展势头。

4 阿秒光脉冲的未来发展趋势

高次谐波的发现和阿秒脉冲的产生,将人们认识物质结构中超快动力学的视野推进到了一个新的王国。如目前比较活跃的利用电子在激光场中的重碰过程探测分子电荷转移、利用多电子电离过程研究电子关联效应、利用电子电离偏转角度作为阿秒钟等。通过对电子电离、激发及辐射等问题的基础研究及应用,在可以预计的未来,阿秒光源及阿秒物理将为我们探测微观世界动力学超快过程打开一扇新的大门,并给宏观物理现象的理解带来新的希望。随着应用研究的不断需求,未来阿秒脉冲将会进一步朝着脉宽更窄、能量更高、波长更短的方向发展,可望在近年内实现最短脉宽世界纪录的新突破,并建成开放的大科学装置,用于开展最前沿的科学研究。

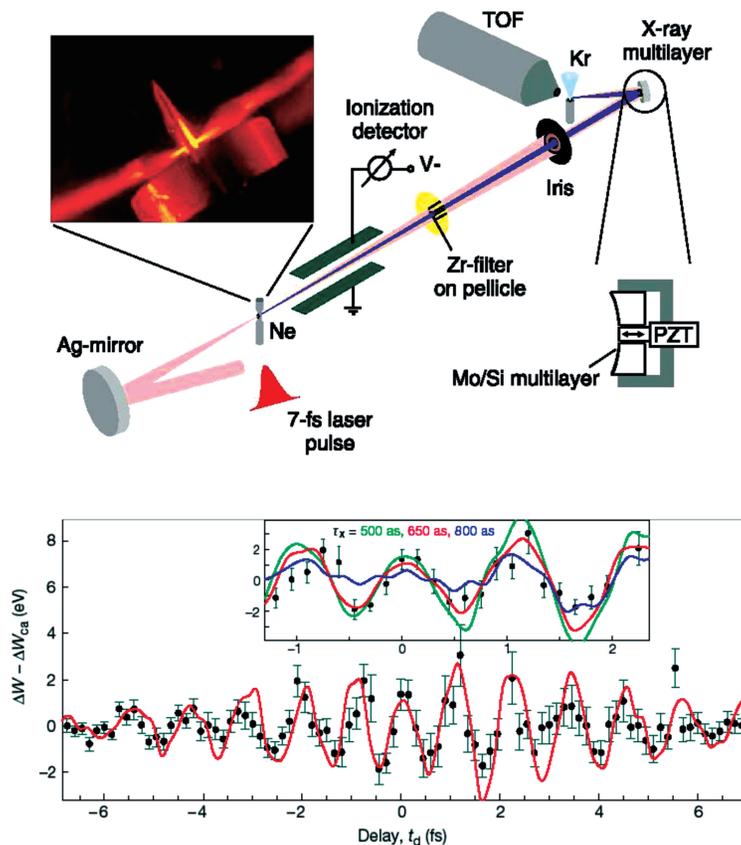


图 5 产生孤立单阿秒脉冲的实验示意图及测量结果

参 考 文 献

- [1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Physical Review Letters*, 1979, 42(17): 1127—1130.
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li XF, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1988, 21(3): L31—L35.
- [3] Corkum PB. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994—1997.
- [4] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov MY, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117—2132.
- [5] Paul PM, Toma ES, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 2001, 292(5522): 1689—1692.
- [6] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2007, 414: 509—513.
- [7] 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. *Optics Express*, 2017, 25(22): 27506—27518.
- [8] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163—234.
- [9] 魏志义, 许思源, 江昱佼, 等. 阿秒脉冲产生的技术原理及进展. *科学通报*, 2021, 66(8): 889—901.
- [10] Zhan MJ, Ye P, Teng H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV. *Chinese Physics Letters*, 2013, 30(9): 093201.

Attosecond Light Pulses for Observing Electron Motion—Review of the Nobel Prize in Physics in 2023

Bingbing Wang Zhiyi Wei*

Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190

Abstract The 2023 Nobel Prize in Physics was awarded to three professors, Pierre Agostini from Ohio State University in the United States, Ferenc Krausz from the Max Planck Institute of Quantum Optics in Germany and the University of Munich, and Anne L'Huillier from the University of Lund in Sweden, for their contributions to the experimental methods that generate attosecond pulses of light for the study of electron dynamics in matter. Due to the time scale of electron motion in matter being on the attosecond level, attosecond light sources and attosecond physics have opened the door to exploring ultrafast processes in the microscopic world and bring new hope to understand the macroscopic physical phenomena.

Keywords attosecond pulse; high-order harmonic generation (HHG); three-step model; carrier envelope phase; Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transitions (RABBIT)

(责任编辑 刘敏 张强)

* Corresponding Author, Email: zywei@iphy.ac.cn