

激光、啁啾脉冲放大、超快光学和诺贝尔奖

赵昆

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
E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn

北京时间2018年10月2日, 瑞典皇家科学院在斯德哥尔摩宣布, 将2018年诺贝尔物理学奖授予美国科学家阿瑟·阿什金(Arthur Ashkin)、法国科学家杰拉尔·莫如(G rard Mourou)和加拿大科学家当娜·史翠兰(Donna Strickland), 以表彰他们“在激光物理领域的突破性发明”。阿什金的贡献为“光学镊子及其在生物系统的应用”, 莫如和史翠兰的贡献为“产生高强度超短光学脉冲的方法”。本文将重点介绍这种“产生高强度超短光学脉冲的方法”和超快光学之间的关系。

超快光学是利用光学手段研究微观粒子在原子分子尺度上的超快动力学和瞬态现象的物理学分支; 从某种意义上讲可以看作是19世纪以来高速摄影发展起来的概念与20世纪60年代出现的激光光源结合的产物。

人眼的视网膜有 $1/24$ s(约42 ms)的视觉暂留效应, 所以人眼的时间分辨能力只有24 帧。如果一个物体在42 ms中有明显的运动或变化, 人眼就无法分辨其中的细节。高速摄影利用极短的曝光时间或闪光灯将运动和变化的目标凝固或“定格”在一个或者一系列的刹那间——帧, 在这些“刹那间”目标的运动和变化小到可以忽略。当一帧一帧回放时, 人们就可以对其变化的细节进行观察、研究或者欣赏。

高速摄影是从英国人泰伯(William Henry Fox Talbot, 1800~1877)在1851年利用莱顿瓶做闪光灯拍摄了贴在旋转轮上的报纸开始的, 这后来被称为“闪光摄影”(spark photography)^[1]。1878年英国出生后移民美国的摄影师迈布里奇(Eadweard Muybridge, 1830~1904)与曾担任加利福尼亚州州长的斯坦福(Leland Stanford, 1824~1893, 斯坦福大学的创立者)在帕罗奥图(Palo Alto)的马场(即现在斯坦福大学校园)拍摄了奔马系列照片(Galloping Horse), 证实了马在奔跑时有四蹄腾空的瞬间。同时期, 以及之后的100多年间, 纹影照相法(schlieren photography)、阴影照相法(shadowgraph)、转镜式高速摄影、光学分光法、变像管扫描法、频闪摄影法(stroboscopic photography)等一系列技术相继出现, 曝光时间、闪光灯时间和图像间隔达到了微秒($1\ \mu\text{s}=10^{-6}$ s)甚至纳秒($1\ \text{ns}=10^{-9}$ s)量级。同时, 宏观运动的速度是相当有限的。比如百米赛跑世界纪录是牙买加人



赵昆 中国科学院物理研究所副研究员。从事阿秒光学、超快光学、强场物理、超短超强飞秒激光、超快动力学等方向的研究工作, 尤其在极紫外阿秒脉冲的产生和测量、以及少周期飞秒激光脉冲的产生和应用等领域取得了具有国际先进水平的成绩。2011年获评美国光学学会资深会员; 2018年成为国际阿秒科学与技术委员会委员。

博尔特的9.58 s, 平均10.4 m/s; 步枪或榴弹炮的弹丸离开枪炮口时的初速度是800 m/s左右; 传说中的高超音速武器即使达到10倍音速, 也不过就是3400 m/s。以第三宇宙速度(16.7 km/s)飞出太阳系的旅行者一号在1 ns中也只移动了16.7 μm , 这对于直径几米的飞船是可以忽略的。现代高速摄影完全可以拍摄和研究宏观物体和运动。

但是, 微观粒子的运动速度要高得多。处于氢原子基态电子的动能是13.6 eV, 对应于 2.2×10^6 m/s, 比旅行者一号高了2个数量级。电子以此速度在玻尔半径(5.3×10^{-11} m)上绕氢原子核转1圈只需要大约 1.5×10^{-16} s, 也就是150 as ($1\ \text{as}=10^{-18}$ s)。这只是氢原子中电子的最低速度, 激发态电子运动更快。由于原子轨道模型, 玻尔(Niels Henrik David Bohr, 1885~1962)在1922年获得诺贝尔物理学奖。面对这样一个疯狂的微观世界, 高速摄影中机械快门和闪光灯技术都显得力不从心。快门不可能更快了, 但是闪光还可以更短吗?

美国休斯飞机公司下属休斯实验室的梅曼(Theodore Harold “Ted” Maiman, 1927~2007)在1960年实现了世界上第一个相干光源——红宝石(掺铬的三氧化二铝晶体)激光器, 输出波长694.3 nm^[2]。这是一台闪光灯泵浦的单频激光, 其脉冲宽度大约在微秒量级。对于高速摄影而言, 梅曼激光并没有带来参数(曝光时间)的飞跃。但是作为一种基于完全不同物理过程的崭新光源, 激光为这个世界带来了巨大的变革。现在它几乎无处不在, 从科研、工业和军

事到通讯、娱乐和艺术,以及我们的日常生活——在影碟机里就有激光器、超市收款台扫条码的机器也是激光、激光甚至可以用来做治疗近视眼和皮肤病的手术。

激光的理论基础是19世纪末到20世纪初发展起来的原子物理和量子力学,包括原子能级结构、电子在能级之间的跃迁以及光(子)与电子的相互作用。基于这一理论体系,爱因斯坦(Albert Einstein, 1879~1955)^[3]在1916年提出了受激辐射(stimulated emission)的概念。爱因斯坦1921年获得诺贝尔物理学奖,不过不是因为受激辐射,而是因为光电效应和理论物理。普通的辐射是处在系统(比如原子)上能级(激发态)的电子跃迁到下能级(低激发态或基态)并释放一个光子,光子能量等于上下能级的能量差。这个过程没有外界干扰或触发也会发生,称为自发辐射(spontaneous emission)。多个原子产生自发辐射时,每个原子辐射的光子能量可能是相同的,但是它们的发射方向、偏振、相位是随机的。普通光源,如日光、火光、白炽灯、闪光灯等,都是自发辐射源。而受激辐射是指电子处在上能级时,同时有能量恰好等于上下能级能量差的光子入射,电子就有一定概率跃迁到下能级同时释放一个和入射光子一模一样的光子——不仅能量,方向、偏振、相位等都一样。激光之名也是源于此——Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation (LASER),直译就是受激辐射的光放大。这里还引入了相干的概念——指两束光或两个光子具有相同的相位或固定的相位差。受激辐射产生的光子与入射光子是相干的,或者说激光是相干光。相干性是产生干涉现象的前提,也是激光其他特性的基础,包括方向性和高亮度。相干性使人们可以把大量光子压缩到超短的激光脉冲里作为超快光学的研究工具。

然而,要想获得实用并且可以持续运转的激光器,还要满足粒子数反转的条件,即电子处在上能级的原子要多于处在下能级的。同时激光介质需要有多于仅仅上下两个能级的结构来实现一个可操作的闭合电子跃迁路径;需要合适的泵浦源提供实现粒子数反转的能量;还要放置在谐振腔里实现增益反馈^[4]。当光子在谐振腔里传播很多个来回,不断通过受激辐射产生大量相干光子,就形成一束可以实际使用的激光(图1)。第一个受激辐射器是美国哥伦比亚大学的汤斯(Charles Hard Townes, 1915~2015)等人^[5,6]1953年做成的,增益介质是用高压电源泵浦的氨分子(NH₃),发射波长大约12 mm,频率24 GHz,在微波波段,因此被称为MASER(Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation, 激微波)。相关文章于1954和1955年发表。苏联科学院列别捷夫物理研究所的巴索夫(Nicolay Gennadiyevich Basov, 1922~2001)和普洛柴诺夫(Aleksandr Mikhailovich Prokhorov, 1916~2002)^[7]在1955年也发表了关于MASER的理论文章。这是人类掌握的第一个受激辐射源。以此为基础,汤斯和他的妹夫——贝尔实验室的肖洛(Arthur Leonard Schawlow, 1921~1999)^[8]在1958年提出

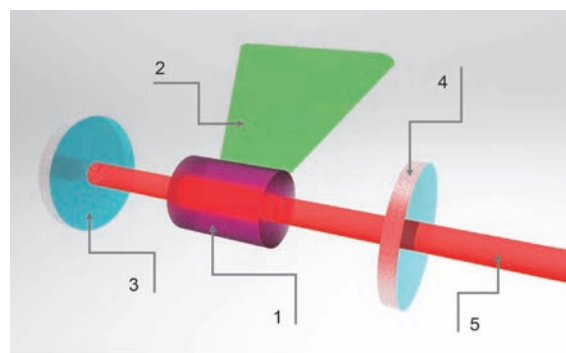


图1 (网络版彩色)激光原理。1, 激光增益介质; 2, 提供粒子数反转的泵浦能量输入; 3, 谐振腔镜; 4, 谐振腔镜兼激光输出镜; 5, 输出的激光光束

Figure 1 (Color online) Schematic of a laser cavity. 1, Laser medium; 2, pump to drive population inversion; 3, cavity mirror; 4, cavity mirror/output coupler; 5, laser output

了红外和可见光波段受激辐射装置的概念,并称之为“infrared and optical masers”。但是人们更乐于接受LASER这个词,最终“激光”这一名称确定了下来。1964年,汤斯、巴索夫和普洛柴诺夫共同获得诺贝尔物理学奖。肖洛也于1981年因为激光光谱学与布隆伯根(Nicolaas Bloembergen, 1920~2017)一起获得诺贝尔物理学奖。

由于在相同平均功率下,脉冲越短峰值功率越高,人们对更短光脉冲的追求自从激光出现后就没停止过。1961年,同样在休斯实验室工作的McClung和Hellwarth^[9]做出了第一台调Q激光器。他们在红宝石激光器的谐振腔里安装了一个克尔盒,加电压后可以改变透射光的偏振,进而降低谐振腔的增益,因此增益反馈无法维持,激光输出也就没有了。这时泵浦源还在运转,介质中粒子数反转持续增强,就好像把河道截流水位上涨一样。再去掉克尔盒的电压,谐振腔增益反馈重新建立,介质中储存的能量迅速转化成激光脉冲输出,就好像开闸放水。用这个办法他们得到了120 ns的激光脉冲。类似这种的调Q激光器所能输出的最短脉冲大约是10 ns。

1964年,美国贝尔实验室的Hargrove等人^[10]做出了第一台锁模激光器。从此,锁模技术成为人们获得短脉冲的有效手段。在谐振腔中,通常会有多个振荡模式(称为纵模)满足谐振条件。属于这些纵模的光子从增益介质出发在谐振腔里跑一圈再回到增益介质时相位不变,可以持续得到放大从而形成激光。这些纵模频率接近,但是彼此独立运转,相位之间没有固定的关系。锁模就是让纵模相对相位固定下来,多个频率接近而且相位差固定的纵模就可以在时域上通过干涉形成短脉冲;纵模数目越多或者占据的光谱越宽,形成的脉冲就有可能越短。已知光谱(频域上的光强分布)和各光谱成分的相位,可以通过傅立叶变换推导出时域上的电场分布,从而计算出脉冲宽度。当各光谱成分的相位差均为零时,脉冲最短,称为傅立叶变换极

限(transform limited); 处于变换极限脉冲的脉宽和光谱宽度的乘积(时间带宽积)具有最小值。如果相位差不为零, 时间带宽积就会增加, 这种脉冲称为啁啾脉冲。相比变换极限脉冲, 啁啾脉冲内各光谱成分的到达时间有差异, 脉冲宽度就增加了。

贝尔实验室这台激光的增益介质是氦氖混合气体, 锁模用的声光调制器是熔石英。在调制器上加上和腔长相匹配的调制频率使不同步或相位不固定的频率成分因为损耗太大而不能激发, 这种方式是主动锁模。他们在633 nm的中心波长获得了重复频率56 MHz, 2.5 ns半宽的脉冲输出。

1965年, 美国Honeywell公司的Mocker and 明尼苏达大学的Collins在红宝石激光器上利用腔内饱和吸收体实现了第一次被动锁模^[11]。介质的饱和吸收或非线性光学特性使得强度高于某一阈值的纵模可以几乎毫无损失的在腔内传播从而有利于增益放大, 而低于此阈值的纵模则由于损耗太大被抑制, 最终达到锁模的目的。与外加调制信号的主动锁模相比, 这是被动锁模。这个结果只是一个原理性的验证实验, 并且只是调Q的被动锁模激光器, 锁模输出是覆盖在调Q包络下时断时续的脉冲序列。第一台连续输出的被动锁模激光出现在1972年, 是美国贝尔实验室的Ippen等人^[12]实现的。他们在氩离子激光泵浦的染料激光器上利用染料饱和吸收盒获得了中心波长600 nm左右的1.5 ps被动锁模脉冲输出。1981年, 贝尔实验室的Fork等人^[13]利用一种特殊的被动锁模方式——碰撞脉冲锁模, 实现了90 fs($1\text{ fs}=10^{-15}\text{ s}$), 带宽5 nm的接近变换极限的脉冲输出。1985年, 又是贝尔实验室的Valdmanis等人^[14]在碰撞锁模的染料激光器腔内插入了一套棱镜用来调节色散, 从而获得了634 nm附近的27 fs脉冲。

以上讲到的激光都是在严格意义上满足激光器三要素的: 增益介质、泵浦源和谐振腔, 称为“激光振荡器”。在二十世纪七八十年代锁模染料激光振荡器迅速发展的同时, 作为现代广义激光器基础的其他相关技术已经出现; 将要替代染料激光的新介质和新锁模技术也就要孕育成型了。广义激光是指那些不完全具备狭义三要素但是能够产生相干辐射的光源, 包括激光放大、频率转换、频谱展宽等。这一系列的成果, 尤其是激光放大, 成功地推动了激光脉冲向更短更强的方向发展。

激光放大是低能量脉冲经过已经获得粒子数反转的增益介质从而得到相对高能量的激光脉冲输出。这可以利用谐振腔(再生放大)也可以不用(多通放大)。早在1969年美国加州大学劳伦斯辐射实验室(劳伦斯·利弗莫尔国家实验室的前身)的Swain和Rainer^[15]就用钽玻璃搭建了第一个再生放大器, 那时被称为“多通共振激光放大器(many-pass resonant laser amplifier)”。1970年联合飞行器实验室的Buczek等人^[16]搭建了一台环形再生放大器。第一个具有现代放大器几乎全部细节的再生放大器是1980年加州大学劳

伦斯·利弗莫尔实验室(在劳伦斯辐射实验室之后的劳伦斯·利弗莫尔国家实验室的前身)的Murray和Lowdermilk^[17]利用Nd:YAG(掺钕的钇铝石榴石)实现的。1981年, 劳伦斯·利弗莫尔国家实验室的Murray等人^[18]发表了一篇对多通放大器进行详细讨论的文章。此时放大器的输出脉冲能量受到激光介质以及其他光学元器件破坏阈值的限制而不能太高。

1985年, 美国罗切斯特大学的史翠兰和莫如发表了啁啾脉冲放大的文章^[19]。他们把Nd:YAG振荡器输出的150 ps脉冲(谱宽5 nm, 已经是啁啾脉冲了)经过1.4 km的光纤展宽至300 ps, 然后送入钽玻璃再生放大器, 把入射脉冲大约30 nJ的能量放大了将近5个数量级至2 mJ。再经过光栅压缩后产生了中心波长在1.06 μm 的1.5 ps脉冲。这里脉宽和能量的参数都不算太出众, 但是他们引入色散在时域上将种子光脉冲拉长的方法突破了放大器输出脉冲能量的限制。放大器内限制脉冲能量的参数不是脉冲能量本身, 而是光功率密度, 就是能量除以脉冲宽度再除以光斑面积。功率密度正比于激光在传播介质内电场强度的平方, 代表了激光在介质中引起非线性过程、多光子过程、电离以至于介质材料破坏的能力。在低功率密度下, 激光在介质中会发生折射、反射、衍射、散射、色散等线性光学过程; 当功率密度达到一定阈值以上时, 就会发生自相位调制、自聚焦、频率变换等非线性光学过程, 可能导致激光脉冲时间和空间上的畸变甚至破坏; 再高, 就会产生介质电离甚至损坏。在光斑面积不变的条件下, 尤其对于超短激光脉冲, 比如皮秒和飞秒脉冲, 微焦量级的能量就可能产生会引起介质电离和损坏的功率密度, 破坏激光放大器中的增益介质和其他光学元件, 限制了其输出能量。史翠兰和莫如的啁啾脉冲放大将激光光谱中不同的频率成分在时间上彼此拉开, 增加脉冲宽度, 这就降低了功率密度, 抑制了破坏性的非线性光学和电离等过程; 低功率密度的脉冲就可以从增益介质中提取更多的能量。当放大到相同的阈值功率密度时, 这样的长脉冲就可以携带更多的能量, 再经过消除色散的压缩器就可以获得峰值功率高出元器件破坏阈值的脉冲(图2)。啁啾脉冲放大技术使激光放大器的输出脉冲能量几乎没有了上限, 成为当今高能脉冲激光的坚实基础^[20]。这正是史翠兰和莫如在33年之后获得诺贝尔物理学奖的原因——“产生高强度超短光学脉冲的方法”。

几乎同时, 另一个对当代激光物理和技术有着巨大影响的发现在1986年出现了。美国施瓦茨电光公司的Moulton^[21]和联邦德国汉堡大学的Albers等人^[22]同时公布了一种新激光介质——钛宝石($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$, 掺钛三氧化二铝)。3年后, 英国伦敦帝国学院的French等人^[23]首先对钛宝石实现了腔外主动锁模。1991年, 苏格兰圣安德鲁斯大学的Spence等人^[24]实现了被动锁模并获得60 fs的脉冲输出。与以往不同的是, Spence等人的激光腔里没有饱和吸

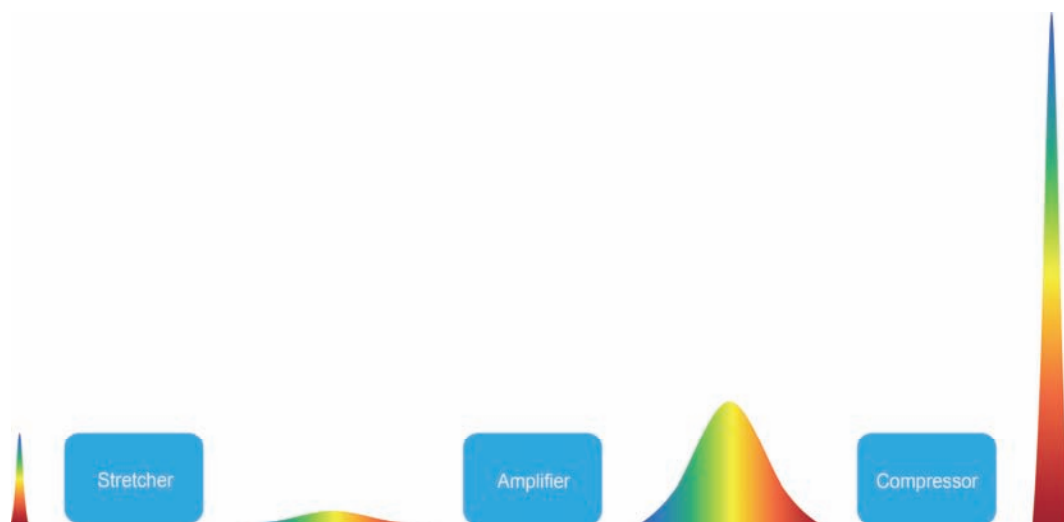


图2 (网络版彩色)啁啾脉冲放大原理. 低能量脉冲经展宽器(stretcher)拉长脉宽, 再经放大器(amplifier)获得能量放大, 最后经压缩器(compressor)得到高能量的短脉冲输出

Figure 2 (Color online) Chirped pulse amplification. A weak laser pulse is chirped and stretched in time by the stretcher, so that it may be amplified to much higher energy while maintaining a relatively low intensity in the amplifier. Then, an optical compressor is used to remove the chirp of the pulse, producing a high-energy short pulse

收介质, 被动锁模完全是靠钛宝石中的一种被称为“克尔透镜”的非线性光学效应实现的. 1993年, 美国华盛顿州立大学 Kapteyn 和 Murnane 夫妇的研究组^[25]实现了钛宝石振荡器 11 fs 的锁模脉冲输出; 2001年, 德国卡尔斯鲁厄大学等单位的 Eil 等人^[26]利用钛宝石振荡器获得了脉宽 5 fs, 光谱覆盖超过一个倍频程的脉冲输出. 克尔透镜锁模有多种技术上的优势, 尤其对比当时广泛应用的染料激光, 取消了液体染料和吸收剂的全固态钛宝石谐振腔使建造激光器变得异常简单. 对比染料, 钛宝石的上能级寿命更长、饱和通量更高, 更有利于产生高功率激光输出; 同时, 钛宝石具有优秀的光学均匀性和导热性、较高的硬度和破坏阈值, 尤其是非常宽的吸收和发射光谱, 可以支持亚 5 fs 脉冲; 即使与众多的固体激光材料相比其参数也异常出众.

与啁啾脉冲放大和克尔透镜锁模技术相结合, 钛宝石激光飞速发展, 逐渐成为到目前为止在超短和超强激光脉冲领域应用最广泛的介质. 1991年, 时在美国密歇根大学的莫如^[27], 以及斯坦福大学^[28]和加州大学伯克利分校^[29]已经用钛宝石振荡器和放大器在较低的重复频率上 (10 Hz) 获得了脉宽 100 fs 左右、能量超过 1 mJ 的激光脉冲, 尤其加州大学伯克利分校的脉冲能量达到了 450 mJ^[29]. 1995年, 华盛顿州立大学在 10 Hz 重频获得了 26 fs, 60 mJ 的脉冲^[30]. 同时, 美国密歇根大学^[31,32]、宾夕法尼亚大学^[33]、华盛顿州立大学^[34]和奥地利维也纳科技大学^[35]也利用钛宝石振荡器和放大器在千赫兹重复频率上获得了能量在亚毫焦至毫焦量级的飞秒激光脉冲. 1995~2000年, 中山大学^[36,37]、中国科学院西安光学精密机械研究所^[38]和中国科学院物理研究所^[39]也分别实现了 20 fs 左右的钛宝石

锁模振荡器脉冲输出, 5 kHz, 50 fs, 0.1 mJ 和 10 Hz, 25 fs, 36 mJ 的钛宝石放大器脉冲输出.

目前, 钛宝石放大器可以输出脉宽小于 15 fs, 能量 0.2 J, 峰值功率超过 10 TW (1 TW = 10^{12} W) 的脉冲 (2013年, 美国中佛罗里达大学)^[40]; 或者能量高于 192 J, 脉宽小于 30 fs, 从而峰值功率超过 5 PW (1 PW = 10^{15} W) 的脉冲 (2015年, 中国科学院上海光学精密机械研究所)^[41]. 时至今日, 以钛宝石为激光介质, 利用克尔透镜技术实现锁模种子激光, 利用啁啾脉冲技术进行能量放大的超短超强脉冲激光广泛应用于原子分子物理、超快光学、超快化学、瞬态光谱学、等离子体物理、激光粒子加速、核物理与核医学、实验室天体物理、激光聚变、高能物理等领域, 成为前沿科技发展的最重要驱动光源. 在钛宝石介质、克尔透镜锁模和啁啾脉冲放大这 3 个核心元素中, 钛宝石与克尔透镜现象都是自然界中原本存在的, 而啁啾脉冲放大则是人类智慧的结晶. 从这一点看, 以及在这 30 多年中超短超强激光脉冲为人类科研与生活带来的巨大影响, 2018 年的诺贝尔物理学奖可以说是实至名归.

超短超强相干光脉冲, 就超快光学领域而言, 为我们提供了可以对微观运动进行观察甚至拍照的闪光灯. 如果我们利用探测器记录对应于一系列激光脉冲中每个脉冲的微观状态或粒子运动的一系列现象, 比如光谱、吸收、荧光辐射、粒子动量或能量等, 就相当于给它们拍了一系列高速摄影照片. 从时间尺度上讲, 晶体中晶格的振动、化学反应, 或是小分子的转动对应于皮秒或更长, 可以用皮秒激光脉冲来观测; 化学键或小分子的振动则发生在飞秒量级; 而更快的电子运动, 就需要阿秒脉冲才能分辨. 基于

脉冲激光的现代超快光学就是沿着这条轨迹发展起来的。

在激光发明之前人们已经开始研究微观粒子的运动和变化了。1950年前后,英国剑桥大学的Porter^[42]就利用强闪光灯引发化学反应,又用泵浦探测的方法通过测量中间产物的光谱来测量反应速度,精度可以达到微秒量级。由于对超快化学反应的研究工作,他们和Manfred Eigen分享了1967年的诺贝尔化学奖。

在激光发明之后,脉冲激光迅速地被应用到超快测量当中。早在1967年,美国IBM华生研究中心的Shelton和Armstrong^[43]通过测量透射率随时间的变化测量了染料饱和和吸收的弛豫时间,确定其上限是25~35 ps。在二十世纪七八十年代,人们利用皮秒激光器对分子动力学过程进行了大量的研究工作,包括液体中光致克尔效应、反应中间态寿命、双分子反应、分子间能量或电荷转移、分子转动和振动、分子异构体转化等等;使用的激发和探测手段主要包括拉曼光谱、共振吸收以及荧光辐射等;所研究的过程长至几个纳秒,短至皮秒。尤其是美国加州理工学院的泽维尔(Ahmed Hassan Zewail, 1946~2016)1985年发表了有关氰化碘分子解离过程的文章^[44],以及在1988年前后有关化学反应超快研究的文章^[45,46],最终产生了被称为“飞秒化学”的研究领域,把超快光学研究推进到了飞秒尺度。泽维尔也因此于1999年获得诺贝尔化学奖。

对于氰化碘(ICN)的解离过程,泽维尔的数据分析表明,碘和氰的解离发生在200 fs之内,在此期间氰化碘分子最多只转动了7°。也就是说,在飞秒尺度上,相对比较慢的分子转动几乎被冻结了。这正是高速摄影所追求的将运动定格的效果:超快光学的技术可以把氰化碘分子在200 fs内解离的过程一帧一帧拍下来进行分析,而更慢的分子转动在整个解离过程中都被冻结,这对于人们把不同的动力学过程相互隔离以分别进行研究是必不可少的手段。

还要不要更快呢?我们通常接触到的物理和化学现象,除去引力(包括重力)作用,基本都属于电磁相互作用过程。例如,原子中电子的跃迁和电离;化学材料和生物体中化学键的断裂和形成;固体中的电子散射、等离子体、超导相变;尤其是光与物质的相互作用,例如光电效应、各种吸收和辐射、包括受激辐射。这些现象的物理基础是带电粒子的相互作用及其运动。电子是常见的带电粒子中质量最小的,在物理过程中的响应速度要比原子分子和晶格结构快得多,因此,电子运动和电子关联是多电子体系中基础和核心的物理过程。皮秒或飞秒尺度的晶格和分子运动其实发生在电子运动之后,是电子运动的结果。例如,在双原子分子的光致解离过程中,首先是外层电子吸收光子后跃迁到不稳定的高能态,促使分子中的两个原子向相反方向运动最终分离。电子超快运动是透彻地了解这些物理现象的钥匙。

电子运动的时间尺度是在阿秒量级。现有飞秒脉冲的中心波长在可见到近红外波段,周期在1~3 fs左右,无

法获得0.1 fs的脉冲。获得阿秒脉冲的办法是将整个光谱向短波方向移动到深紫外甚至X射线波段。

随着激光技术的发展,尤其是啁啾脉冲放大技术的出现,人们把飞秒激光脉冲的能量提高到了毫焦以上。几十至几百飞秒的脉冲经过光学聚焦,焦点处的峰值功率密度或电场强度可以与原子内部束缚电子的库伦场相比较。在这种条件下,电子就可以挣脱原子核的束缚进入自由态而发生电离。1963年,美国俄亥俄州立大学的Damon和Tomlinson^[47]以及联合飞行器实验室的Meyerand, Jr.和Haught^[48]分别利用红宝石激光器进行了气体电离实验,这最终导致强激光场电离研究领域的形成。1987和1988年,美国伊利诺伊大学芝加哥分校的McPherson等人^[49]和法国原子和表面物理研究所的Ferry和L'Huillier等人^[50]分别观察到激光电离过程中的光辐射——高次谐波,波长短至几十纳米,位于极紫外波段。1993年,加拿大国家研究委员会的Corkum^[51]详细阐述了强场电离的半经典三步模型,解释了高次谐波光子出现的原理。次年,Corkum等人^[52]又提出了利用高次谐波产生孤立阿秒光脉冲(区别于不加处理的高次谐波对应的阿秒脉冲串)的理论和实验方法。2004年,奥地利维也纳科技大学Krausz研究组^[53]利用5 fs的驱动激光结合基于瞬态光电子谱的阿秒条纹相机测量并重构了脉宽为250 as的孤立脉冲,在实验上突破了飞秒的界限。自此,超快光学就进入了阿秒领域。

2012年,美国中佛罗里达大学常增虎研究组^[54]获得了67 as的孤立脉冲,中心光子能量90 eV(波长约14 nm)。2013年,中国科学院物理研究所魏志义研究组^[55]使用3.8 fs的驱动脉冲获得了160 as的孤立脉冲,是国内阿秒脉冲的唯一实验结果。在2017年7月由中国科学院物理研究所主办的第六届国际阿秒物理会议上,常增虎研究组和瑞士苏黎世联邦理工学院Wörner研究组分别报道了更短的脉冲。常增虎研究组^[56]于2017年8月份发表了正式论文,用脉宽12 fs的中红外激光驱动获得了53 as的孤立脉冲,中心光子能量为170 eV(波长7.3 nm),刷新了自己保持的前世界纪录,并且第一次将阿秒脉冲的光子能量提高到100 eV以上。2个月后,Wörner研究组^[57]也在发表的论文中公布了脉宽仅43 as的实验结果,成为最新的相干光脉冲世界纪录。

有了阿秒光脉冲这个超快的闪光灯,就可以观测电子运动,给电子拍电影了。2010年,德国马普量子光学所和慕尼黑黑大学与美国加州大学伯克利分校、劳伦斯·伯克利国家实验室和阿贡国家实验室合作发表了用阿秒脉冲对氦离子中电子波包超快动力学研究的成果^[58]。他们在实验中观察到了氦离子对阿秒脉冲吸收谱随时间的振荡,并推算出了氦离子的电子波包在两个能级之间的振荡跃迁——这就是用阿秒脉冲作为闪光灯给电子拍摄的高速摄影照片。这组电子照片的曝光时间小于150 as;两帧之间的间隔只有1 fs。

阿秒是目前人类掌握的最短时间尺度,如果能将相干光脉冲缩短到10 as,就应该能够完全胜任对电子动力学

的超快时间分辨研究了. 自从激光出现, 一系列相关技术的发展, 包括啁啾脉冲放大这样的关键性技术, 把超快光学带入了阿秒领域, 使人们可以对原子内部电子运动和关联行为进行探测. 精密测量电子的动力学特性, 实现对其物理性质的理解, 进而控制原子内电子的动力学行为是人们追求的重要科学目标之一. 有了阿秒脉冲, 我们就能测量甚至操纵单个微观粒子, 进而对微观世界, 也就是一个被量子力学主宰的世界, 进行更基础更具有原理性的观察和描述. 随着阿秒光源的发展和应用范围的拓展, 阿秒光

学会发展到阿秒物理学、阿秒化学、阿秒生物学、阿秒电子学等, 去深入研究在不同材料不同体系中的电子超快运动, 给各种各样的电子运动拍摄它们的高速电影.

基于其发展前景和重要性, 阿秒光学在国际上受到欧美日韩等的重视. 我国科学技术部、国家自然科学基金委员会和中国科学院都投入了重点资金开展研究工作, 目的是深入研究和探索获得更短和更强阿秒脉冲的理论和技術方法, 同时带动国内开展阿秒光学的前沿研究和推动阿秒光学在科研领域的广泛应用.

参考文献

- Shapiro S L. Introduction—A historical overview. In: Shapiro S L, ed. *Ultrashort Light Pulses*. Berlin: Springer, 1977
- Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 1960, 187: 493–494
- Einstein A. Zur quantentheorie der strahlung. *Phys Z*, 1917, 18: 121
- Siegman A E. *Lasers*. California: University Science Books, 1986
- Gordon J P, Zeiger H J, Townes C H. Molecular microwave oscillator and new hyperfine structure in the microwave spectrum of NH_3 . *Phys Rev*, 1954, 95: 282
- Gordon J P, Zeiger H J, Townes C H. The maser—New type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer. *Phys Rev*, 1955, 99: 1264
- Basov N G, Prokhorov A M. Possible methods of obtaining active molecules for a molecular oscillator. *Sov Phys JETP*, 1956, 1: 184
- Schawlow A L, Townes C H. Infrared and optical masers. *Phys Rev*, 1958, 112: 1940
- McClung F J, Hellwarth R W. Giant optical pulsations from ruby. *J Appl Phys*, 1962, 33: 828
- Hargrove L E, Fork R L, Pollack M A. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation. *Appl Phys Lett*, 1964, 5: 4
- Mocker H W, Collins R J. Mode competition and self-locking in a Q-switched ruby laser. *Appl Phys Lett*, 1965, 7: 270
- Ippen E P, Shank C V, Dienes A. Passive mode locking of the cw dye laser. *Appl Phys Lett*, 1972, 21: 348
- Fork R L, Greene B I, Shank C V. Generation of optical pulses shorter than 0.1 ps by colliding pulse mode locking. *Appl Phys Lett*, 1981, 38: 671
- Valdmanis J A, Fork R L, Gordon J P. Generation of optical pulses as short as 27 femtoseconds directly from a laser balancing self-phase modulation, group-velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain. *Opt Lett*, 1985, 10: 131
- Swain J, Rainer F. Many-pass resonant laser amplifier. *IEEE J Quantum Elect*, 1969, 5: 385
- Buczek C J, Freiberg R J, Skolnick M L. CO_2 Regenerative ring power amplifiers. *J Appl Phys*, 1971, 42: 3133
- Murray J E, Lowdermilk W H. Nd:YAG regenerative amplifier. *J Appl Phys*, 1980, 51: 3548
- Murray J E, Downs D C, Hunt J T, et al. Off-axis multipass amplifier as a large aperture driver stage for fusion lasers. *Appl Opt*, 1981, 20: 826
- Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt Commun*, 1985, 56: 219
- Maine P, Strickland D, Bado P, et al. Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification. *IEEE J Quantum Elect*, 1988, 24: 398
- Moulton P F. Spectroscopic and laser characteristics of $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$. *J Opt Soc Am B*, 1986, 3: 125
- Albers P, Stark E, Huber G. Continuous-wave laser operation and quantum efficiency of titanium-doped sapphire. *J Opt Soc Am B*, 1986, 3: 134
- French P M W, Williams J A R, Taylor J R. Femtosecond pulse generation from a titanium-doped sapphire laser using nonlinear external cavity feedback. *Opt Lett*, 1989, 14: 686
- Spence D E, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked $\text{Ti}:\text{sapphire}$ laser. *Opt Lett*, 1991, 16: 42
- Asaki M T, Huang C P, Garvey D, et al. Generation of 11-fs pulses from a self-mode-locked $\text{Ti}:\text{sapphire}$ laser. *Opt Lett*, 1993, 18: 977
- Ell R, Morgner U, Kärtner F X, et al. Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a $\text{Ti}:\text{sapphire}$ laser. *Opt Lett*, 2001, 26: 373
- Squier J, Salin F, Mourou G, et al. 100-fs pulse generation and amplification in $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$. *Opt Lett*, 1991, 16: 324

- 28 Kmetec J D, Macklin J J, Young J E. 0.5-TW, 125-fs Ti:sapphire laser. *Opt Lett*, 1991, 16: 1001
- 29 Sullivan A, Hamster H, Kapteyn H C, et al. Multiterawatt, 100-fs laser. *Opt Lett*, 1991, 16: 1406
- 30 Zhou J, Huang C P, Murnane M M, et al. Amplification of 26-fs, 2-TW pulses near the gain-narrowing limit in Ti:sapphire. *Opt Lett*, 1995, 20: 64
- 31 Salin F, Squier J, Mourou G, et al. Multikilohertz Ti:Al₂O₃ amplifier for high-power femtosecond pulses. *Opt Lett*, 1991, 16: 1964
- 32 Rudd J V, Korn G, Kane S, et al. Chirped-pulse amplification of 55-fs pulses at a 1-kHz repetition rate in a Ti:Al₂O₃ regenerative amplifier. *Opt Lett*, 1993, 18: 2044
- 33 Wynne K, Reid G D, Hochstrasser R M. Regenerative amplification of 30-fs pulses in Ti:sapphire at 5 kHz. *Opt Lett*, 1994, 19: 895
- 34 Backus S, Peatross J, Huang C P, et al. Ti: sapphire amplifier producing millijoule-level, 21-fs pulses at 1 kHz. *Opt Lett*, 1995, 20: 2000
- 35 Lenzner M, Spielmann C, Wintner E, et al. Sub-20-fs, kilohertz-repetition-rate Ti:sapphire amplifier. *Opt Lett*, 1995, 20: 1397
- 36 Lin W, Lai T, Chen Y, et al. 19 fs-pulse generation from a self mode-locked Ti:Spphire laser (in Chinese). *Acta Opt Sin*, 1995, 15: 1151 [林位株, 赖天树, 陈毓川, 等. 由自锁模钛蓝宝石激光器产生 19 fs 脉冲. *光学学报*, 1995, 15: 1151]
- 37 Wei Z Y, Yu Z X, Li R J, et al. Generation of a 26 fs self-mode-locked Ti:sapphire laser (in Chinese). *Chin J Laser*, 1996, A23: 198 [魏志义, 余振新, 李荣基, 等. 26 fs 自锁模掺钛蓝宝石激光器. *中国激光*, 1996, A23: 198]
- 38 Zhao S, Wang Y, Chen G, et al. Amplification and compression of Ti:sapphire femtosecond pulses at high-repetition-rate. *Sci Chin Ser A*, 1998, 41:107
- 39 Wei Z, Zhang J, Xia J, et al. Highly efficient TW multipass Ti:sapphire laser system. *Sci Chin Ser A*, 2000, 43:1083
- 40 Wu Y, Cunningham E, Zang H, et al. Generation of high-flux attosecond extreme ultraviolet continuum with a 10 TW laser. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 201104
- 41 Chu Y, Gan Z, Liang X, et al. High-energy large-aperture Ti:sapphire amplifier for 5 PW laser pulses. *Opt Lett*, 2015, 40: 5011
- 42 Porter G. Flash photolysis and spectroscopy: A new method for the study of free radical reactions. *Proc Roy Soc Lond A*, 1950, 200: 284
- 43 Shelton J W, Armstrong J A. Measurement of the relaxation time of the eastman 9740 bleachable dye. *IEEE J Quantum Elect*, 1967, 3: 696
- 44 Scherer N F, Knee J L, Smith D D, et al. Femtosecond photofragment spectroscopy: The reaction ICN→CN+I. *J Phys Chem*, 1985, 89: 5141
- 45 Zewail A H. Laser femtochemistry. *Science*, 1988, 242: 1645–1653
- 46 Rosker M J, Dantus M, Zewail A H. Femtosecond real-time probing of reactions. I. The technique. *J Chem Phys*, 1988, 89: 6113
- 47 Damon E K, Tomlinson R G. Observation of ionization of gases by a ruby laser. *Appl Opt*, 1963, 2: 546
- 48 Meyerand, Jr. R G, Haught A F. Gas breakdown at optical frequencies. *Phys Rev Lett*, 1963, 11: 401
- 49 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
- 50 Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J Phys B*, 1988, 21: L31
- 51 Corkum P B. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994
- 52 Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses. *Opt Lett*, 1994, 19: 1870
- 53 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder. *Nature*, 2004, 427: 817
- 54 Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891
- 55 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
- 56 Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- 57 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
- 58 Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion. *Nature*, 2010, 466: 739–743

Summary for “激光、啁啾脉冲放大、超快光学和诺贝尔奖”

Laser, chirped pulse amplification, ultrafast optics, and Nobel Prize in Physics

Kun Zhao

Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China
E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn

The Nobel Prize in Physics 2018 was awarded “for groundbreaking inventions in the field of laser physics” with one half to Arthur Ashkin “for the optical tweezers and their application to biological systems”, the other half jointly to Gérard Mourou and Donna Strickland “for their method of generating high-intensity, ultra-short optical pulses”. The latter method is, in fact, the chirped pulse amplification, which is one of the key technics for ultra-intense and ultra-short pulse generation and has been playing a critical role in the advancement of modern ultrafast optics. The time scale of the motions of microscopic objects, including molecules, atoms, and electrons, extends from nano- to attosecond. To acquire details of such ultrafast dynamics on the atomic scale requires a physical process as the tool which should take place on a similar time scale if not shorter.

Ultrafast optics is the short-time scale frontier of physics. The essence of ultrafast optics is the generation of ultra-short optical pulses and the investigation of molecular, atomic and electronic motions with such pulses. Time-resolved spectroscopy with optical pulses as fast as or even faster than the microscopic dynamics under investigation promises a formidable tool to enhance our understanding of ultrafast processes. An essential target of such studies is to explore collective electronic motion and correlation mechanisms in multielectron systems, which represent fundamental problems in both theoretical and experimental researches.

Since the laser was invented in 1960, a series of breakthroughs have been pushing the laser pulse shorter and stronger, including Q-switch, mode-locking, and laser amplification. Furthermore, the combination of Ti:sapphire crystal, Kerr-lens mode-locking, and chirped pulse amplification paved the way to not only even shorter laser pulses but also high-intensity ones never seen before. Such high-intensity and ultra-short laser pulses have made researches in strong-field ionization, high-order harmonic generation and eventually the production of attosecond optical pulses possible. Along such an improvement of the optical pulse width and energy, ultrafast optics, as a frontier of physics research, has also made significant progress in the past years and stepped into the attosecond regime. By now, attosecond optical pulses have permitted researchers the capability to resolve electronic dynamics in real time. As the source and the foundation, the continual development of ultra-short laser pulses is expected to open new avenues in ultrafast studies in the future.

In this article, we are trying to follow the history of the rapid development of high-intensity and ultra-short optical pulses in the framework of atomic structure and light-matter interaction, and to present an intuitive and comprehensive review of the evolution of lasers and ultrafast optics, as well as their substantial impact on physics research in general.

laser, chirped pulse amplification, ultrafast optics, ultrafast dynamics

doi: 10.1360/N972018-01163