



阿秒脉冲驱动激光发展现状及展望

袁浩^{1,2}, 曹华保¹, 王虎山¹, 刘鑫^{1,2}, 孙先伟¹, 王屹山^{1*}, 赵卫^{1*}, 付玉喜^{1*}

1. 中国科学院西安光学精密机械研究所, 西安 710119;

2. 中国科学院大学未来技术学院, 北京 100049

*联系人, E-mail: yswang@opt.ac.cn; weiz@opt.ac.cn; fuyuxi@opt.ac.cn

2020-05-16 收稿, 2020-07-06 修回, 2020-07-06 接受, 2020-07-07 网络版发表

陕西省自然科学基础研究计划-基础研究定向委托项目(2019JCW-03)、西安光学精密机械研究所自主部署重大项目(S19-020-III)、中国科学院重大科技基础设施预研项目(J20-021-III)、国家自然科学基金(61690222)和西安市科技计划重大科研平台建设项目(202005YK01)资助

摘要 阿秒光源是21世纪新兴的光源, 其由于短脉冲、宽光谱、高时空相干性、可调谐等特点而被广泛应用于多学科领域, 可以同时从阿秒时间尺度和纳米空间尺度对微观超快过程进行观测。阿秒脉冲的产生机制与一般超快激光不同, 目前较为成熟的途径是通过超快激光与气体作用的高次谐波极端非线性过程来获得, 因此, 阿秒脉冲产生从根本上依赖于驱动源的性能。本文全面分析了基于高次谐波原理的阿秒脉冲驱动源的特点及发展现状, 并介绍了阿秒脉冲驱动源的发展趋势。

关键词 阿秒, 后压缩, 光参量放大, 中红外, 高功率

阿秒脉冲是指持续时间在阿秒(as, 10^{-18} s)量级的超短光脉冲。从原子内的电子超快运动到生物大分子中的电荷转移, 阿秒脉冲的出现为物理、化学、生物、材料、信息、能源等领域的研究提供了全新的研究手段, 能够同时从纳米空间尺度和阿秒时间尺度开展研究^[1~3]。阿秒脉冲技术的迅速发展离不开阿秒脉冲驱动光源技术的持续进步。阿秒脉冲驱动光源的性能从根本上决定了阿秒脉冲的各项指标, 因而是产生高性能阿秒脉冲光源的根本。啁啾脉冲放大技术(chirped pulse amplification, CPA)极大地推动了阿秒光源的发展, 基于钛宝石激光晶体的飞秒CPA系统是长期以来获得阿秒光源的主要驱动光源。近些年来, 光参量放大(optical parametric amplification, OPA)技术被广泛使用以获得阿秒脉冲驱动光源, 其优势是将阿秒脉冲驱动光源波长从可见和近红外拓展至中红外波段, 可以提高阿秒脉冲的光子能量至X射线波段, 使孤立阿秒脉冲

的脉宽缩短至53 as^[4]。随着越来越多前沿研究领域对高性能阿秒光源的需求, 阿秒脉冲驱动光源的性能提升和技术变革变得极为重要。

本文从高次谐波方法产生阿秒脉冲的原理入手, 详细地阐述了阿秒脉冲驱动光源的特性, 介绍了不同阿秒脉冲驱动光源的产生方法, 并详细分析了阿秒脉冲驱动光源的发展现状以及发展趋势。

1 阿秒脉冲驱动光源的特性

阿秒脉冲驱动光源的特性与阿秒脉冲的产生过程紧密相关。以高强度超快激光与惰性气体作用下的高次谐波过程获得阿秒脉冲为例, 其机理可以通过“三步”模型理论来理解^[5]。首先, 原子中的电子在强激光电场作用下发生隧穿电离而成为自由电子, 然后电子在激光场中加速并获得能量。由于激光电场为振荡电场, 电场方向周期性变化, 因此, 部分被加速的电子会

引用格式: 袁浩, 曹华保, 王虎山, 等. 阿秒脉冲驱动激光发展现状及展望. 科学通报, 2021, 66: 878–888

Yuan H, Cao H B, Wang H S, et al. Development and prospect on driving laser for attosecond pulse (in Chinese). Chin Sci Bull, 2021, 66: 878–888, doi: [10.1360/TB-2020-0594](https://doi.org/10.1360/TB-2020-0594)

被拉回并与母核复合，释放出高能光子，其能量等于电子在光场中获得的动能加上电离势能。可见，高次谐波的产生过程可以被描述为激光场精确操控的电子动力学行为，因而产生的阿秒脉冲强烈依赖于驱动激光，其脉冲能量、波长、脉冲宽度、载波包络相位(carrier-envelope phase, CEP)、稳定性、重复频率等参数决定着阿秒脉冲的性能和应用范围。

阿秒脉冲能量与驱动光能量相关。通过气体靶产生阿秒脉冲实验中，驱动激光的峰值功率密度一般在 $10^{13}\sim 10^{15}$ W/cm²量级^[6]。由于驱动光产生阿秒脉冲的效率通常较低，另外考虑到滤波及补偿阿秒脉冲色散造成的能力损失，阿秒脉冲链的产生效率低于 10^{-4} 量级，孤立阿秒脉冲的效率低于 10^{-5} 量级^[7]，因此，在绝大多数实验中，一般需要阿秒脉冲驱动光的能量在亚毫焦、毫焦甚至更高，而脉冲宽度为飞秒量级^[4,8~10]。阿秒脉冲同样可以通过强场激光与固体靶作用获得，其中基于振荡镜面原理获得的阿秒脉冲，其驱动激光的峰值功率密度则需要达到 10^{18} W/cm²以上，因此需要更高能量的驱动光源^[11]。

阿秒脉冲频谱范围和脉冲宽度与驱动光源的波长紧密相关。根据“三步”模型理论，高次谐波的截止频率 ω_{\max} (对应最高光子能量)可由下式估计：

$$\hbar\omega_{\max} = I_p + 3.17U_p, \quad (1)$$

其中 $U_p = 9.33 \times 10^{-14}I(\text{W/cm}^2)\lambda^2(\mu\text{m})$ ， I_p 为电离能， U_p 为有质动力势， I 是驱动光功率密度， λ 是驱动光波长。很明显，长波长驱动激光有利于获得更高光子能量的高次谐波，因此有利于获得更短阿秒脉冲。同时，更宽的阿秒频谱也极大拓展了阿秒脉冲的应用范围，特别是在X射线波段的应用，也是近些年来研究者们迅速将阿秒脉冲驱动光源转移到中红外波段的原因。2017年，Li等人^[4]使用中心波长为1.8 μm的驱动源，成功产生并测量了53 as的“水窗波段”(284~543 eV)孤立阿秒脉冲，涵盖了碳的K吸收边(284 eV)，为研究钻石、石墨烯等材料的微观超快过程提供了技术基础。在以钛宝石激光系统(波长在0.8 μm左右)作为驱动光源的情况下，阿秒脉冲的光子能量则通常被限制在100 eV以下的极紫外波段^[4,8,12,13]。

阿秒驱动光需要具有稳定的CEP。当驱动光的脉冲宽度达到少周期量级时，CEP对光电场的影响十分显著，影响阿秒脉冲产生。为了获得稳定的阿秒脉冲，需优化驱动光的CEP稳定在某一值附近，从而精确操控电

子运动和阿秒脉冲产生^[8]。

阿秒脉冲源主要包括阿秒脉冲链^[14]和孤立阿秒脉冲^[15]，均有着不同的应用^[16,17]。使用孤立阿秒脉冲光源时，实验结果分析的复杂程度相对较低。若要产生孤立阿秒脉冲，驱动光脉冲宽度极为重要。驱动光每半个周期会产生一个阿秒脉冲，因此理论上需要将驱动激光脉宽控制在1个周期以内以获得孤立阿秒脉冲。但是，通过阿秒脉冲选通技术，孤立阿秒脉冲可以通过脉冲宽度相对较长的驱动激光获得。目前，已报道的选通技术主要包括频谱选通(spectral selection gating)、时间选通(temporal gating)和时空选通(spatiotemporal gating)^[18]。频谱选通技术主要包括振幅选通(amplitude gating, AG)^[8]和电离选通(ionization gating, IG)^[19]，通过在频域上滤出高次谐波频谱截止区附近的连续谱可以获得孤立阿秒脉冲。这是因为高次谐波频谱截止区附近的连续谱成分仅对应驱动光最强电场半个周期时刻所激发的高次谐波，即孤立阿秒脉冲。在AG方法中，通常更短的驱动光有利于产生更短的孤立阿秒脉冲，例如7 fs驱动光可以产生650 as脉冲^[15]，5 fs驱动光可以产生250 as脉冲^[12]，3.3 fs驱动光则可以产生80 as脉冲^[8]。时间选通主要包括偏振选通(polarization gating, PG)、双光选通(double optical gating, DOG)、双色场(two-color gating, TG)等^[7,9,13,20]，是通过偏振、光场合成等手段在时域缩短高次谐波的产生窗口，从而获得孤立阿秒脉冲。该方法对阿秒脉冲驱动光源脉宽的限制进一步放宽。PG方法是基于气体高次谐波产率对驱动光偏振状态的敏感性，即气体高次谐波产率随驱动光远离线偏振而急剧下降，使高次谐波几乎仅在驱动光线偏振的半周期内产生，从而获得孤立阿秒脉冲。通过该方法，研究人员用脉宽为5 fs的阿秒脉冲驱动光源得到130 as的孤立阿秒脉冲^[13]。双色场和多色场方案可以控制驱动光的电场形状，使阿秒脉冲产生过程控制在一个光周期窗口内，因而获得孤立阿秒脉冲。DOG方法综合了PG和双色场两种时间选通，可以使用较长的飞秒激光产生孤立阿秒脉冲。通过使用改进的通用双光选通(general double optical gating, GDOG)方法，脉宽更长的28 fs(约10个光周期)的驱动光也可以产生孤立阿秒脉冲^[21]。时空选通以阿秒灯塔(attosecond lighthouse, AL)^[22]技术为主。AL方法是将不同光周期内产生的阿秒脉冲在角度上分开，通过在远场的空间滤波获得孤立阿秒脉冲。综合分析以上选通技术，频谱选通要求更窄的驱动光脉宽，时间门技术可放宽对驱动光脉宽的

要求。

此外，阿秒驱动光源的重复频率、脉冲能量、稳定性等参数也决定着阿秒脉冲的性能和应用范围。

2 阿秒脉冲驱动光源的产生方法

2.1 少周期阿秒脉冲驱动光源

少周期阿秒脉冲驱动光源主要应用于孤立阿秒脉冲的产生。目前，获得少周期阿秒脉冲驱动光源的方法主要可以分为两类。第一类方法是通过后压缩(post-compression)技术对CPA系统的输出脉冲进行脉宽压缩，以获得少周期的脉冲。第二类是基于光参量放大相关技术直接或结合后压缩技术获得少周期脉冲。

后压缩和CPA技术很长一段时间都是获得少周期阿秒脉冲驱动光源的主要方法。CPA系统可以获得较

高的脉冲能量，但是受限于激光晶体的增益带宽，激光脉冲的光谱宽度并不足以支撑少周期的脉宽，因此需要通过后压缩技术利用强脉冲在介质中的非线性光学效应(自相位调制、自陡峭等)对光谱进行展宽，从而获得少周期脉冲，其CEP需要通过f-2f干涉系统反馈控制来主动锁定。按照技术的不同，后压缩可以分为空心光纤压缩(hollow-core fiber compression, HCF)、薄片组压缩(multiple-plate continuum, MPC)、多通腔体压缩(multipass cell compression, MCC)(图1)。表1为近年来不同技术的实验结果。

HCF是被广泛应用的后压缩技术^[30]。该技术可以获得毫焦量级，接近单周期的阿秒驱动源。空心光纤内径在几十到几百微米不等，内充惰性气体。CPA系统输出激光被聚焦并耦合到空心光纤，较强的功率密度使得激光与惰性气体作用发生自相位调制等非线性过程

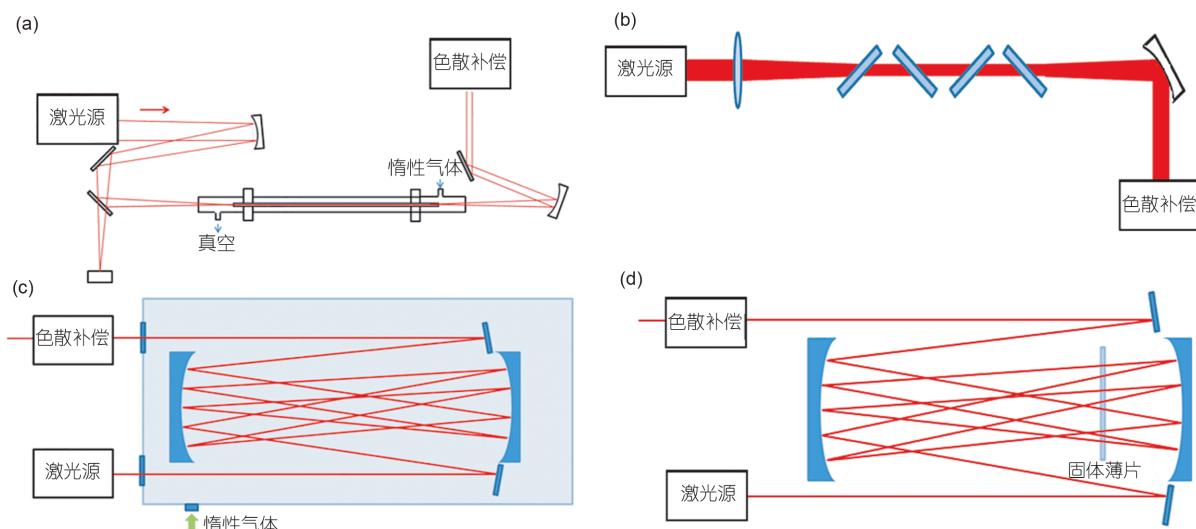


图1 (网络版彩色)后压缩系统结构图。(a) HCF压缩技术;(b) MPC压缩技术;(c) MCC压缩技术充气腔体;(d) MCC压缩技术固体薄片腔体
Figure 1 (Color online) Schematic setup of HCF (a), MPC (b) and MCC systems filled with gas (c) and with thin plates (d)

表1 不同后压缩技术的实验结果

Table 1 The experimental results of post-compression

压缩技术	波长(μm)	重频(kHz)	输出脉冲能量(mJ)	压缩后脉宽(fs)	压缩倍数	效率(%)	数据来源
HCF	0.7	1	2.5	3.2	2.9	25	[23]
HCF	1.03	1	0.65	5.1	33.3	66	[24]
HCF	1.8	0.1	5	12	2.9	46	[25]
MPC	0.7	1	0.68	5.4	5.6	85	[26]
MPC	1.03	1	0.4	3.2	9.6	73	[27]
MCC	1.03	5	17.8	40	33	96	[28]
MCC	1.03	150	0.19	43	7.7	84	[29]

将光谱展宽，再通过啁啾镜等色散元件进行色散补偿而获得少周期脉冲。早期，该技术主要用于钛宝石激光系统的脉宽压缩。为了获得更高的脉冲能量，研究人员通过差分充气^[31]、将输入光变为圆偏光^[32]、引入啁啾等手段不断提高系统的输出脉冲能量。目前，基于钛宝石CPA系统的HCF压缩技术已获得脉宽3.2 fs、脉冲能量2.5 mJ、重频1 kHz、CEP和能量稳定的超短脉冲^[23]。近些年来，HCF技术也逐渐用于长波长脉冲的压缩。Jeong等人^[24]通过6 m长的空心光纤，将1 mJ、170 fs的1.03 μm脉冲压缩至0.65 mJ、5.1 fs，实现了脉冲宽度33倍的压缩。Cardin等人^[25]使用融石英片代替啁啾镜来补偿色散，成功获得5 mJ、12 fs的1.8 μm脉冲。2016年，Fan等人^[33]利用充氩(Ar)气空心光纤对6 mJ、80 fs、3.2 μm脉冲进行光谱展宽，展宽光谱可支持20 fs的脉宽。2018年，Wang等人^[34]使用充氮气空心光纤技术将105 fs脉宽的4 μm中红外脉冲压缩至21.5 fs(约1.6个周期)，脉冲能量达到2.6 mJ。

MPC技术自2014年诞生后就引起了人们关注，其利用激光与多块薄片(毫米或亚毫米厚度)材料的非线性作用进行光谱展宽^[35]。通过控制光强和薄片厚度，使激光在由于自聚焦即将造成材料损伤前从薄片后表面出射，在空间传播一段距离后进入下一个薄片，这样在获得足够的光谱展宽的同时避免了对块材料造成损伤。MPC的实验系统简单，光谱展宽量大，可获得接近单周期的脉冲宽度，而且系统的效率可达80%以上^[26]。但是，驱动光脉冲能量较大时会导致固体材料的损伤和光束对空气的电离，目前该类系统的输出脉冲能量在亚mJ量级^[26,27,35-37]。

MCC系统的主体是由两个凹面反射镜构成的腔体，在腔体内部充入惰性气体或者插入固体薄片。通过优化两面凹面镜曲率半径和距离、激光入射的角度，可以实现激光在腔体内的多次往返。激光在腔体内每次往返累积B积分较小，从而保证了光谱展宽的空间均匀性。数十趟往返后，激光可以获得明显的光谱展宽。MCC可以获得较高的输出脉冲能量和效率，同时实现非常高的压缩倍数。Kaumanns等人^[28]在充入Ar的气体腔中，将脉宽1.3 ps、能量18.6 mJ的脉冲压缩至41 fs、17.8 mJ，获得了33倍的压缩和95.7%的效率。2020年，Balla等人^[38]利用充氮气双级MCC将1.2 ps脉冲压缩至13 fs的少周期脉宽。但是，该技术目前还未获得接近单周期的脉冲。

除了后压缩技术，OPA也可以获得阿秒脉冲驱动

光源，并且极大拓展了阿秒驱动光源的波长调谐范围。与CPA不同，在OPA中并没有能量存储过程，种子光通过光参量放大过程获得能量，因此热效应很小。种子光可以通过白光展宽和差频(difference frequency generation, DFG)过程产生，因此CEP是稳定的^[39-41]。同时，由于白光光谱较宽，可以很容易实现宽波段波长调谐。近年来，OPA技术被越来越广泛地用来获得中、远红外的少周期高能量激光脉冲。与CPA系统相比，OPA系统在中、远红外波段上具有明显的优势。2015年，研究人员通过OPA技术获得了中心波长1.8 μm、脉冲能量10 mJ、脉冲宽度5个光周期的激光脉冲^[39]。但是，晶体的损伤阈值限制了脉冲能量的进一步提高，因此，需要其他技术手段来克服这个瓶颈。通过对OPA技术进行优化，光参量啁啾脉冲放大(optical parametric chirped pulse amplification, OPCPA)、双啁啾光参量放大(dual-chirped optical parametric amplification, DC-OPA)及频域光参量放大(frequency domain optical parametric amplification, FOPA)等方法相继被提出(图2)。

在OPCPA技术中，先对种子光的脉宽进行啁啾展宽，然后再通过窄谱宽的百皮秒泵浦光对种子光进行多级参量放大，最后通过补偿色散来压缩放大后的脉冲。一方面，OPCPA技术通过对种子光的展宽，避免了对非线性晶体的损伤。另一方面，该技术将高重频的窄带激光器运用于阿秒驱动源的研究，提高了阿秒驱动源的平均功率水平。与钛宝石激光系统相比，掺镱(Yb)和掺钕(Nd)激光等窄带激光系统可以实现较高的重复频率，在阿秒驱动源技术发展上具有非常大的应用潜力。使用掺镱激光系统作为泵光，目前已获得重频100 kHz、中心波长1.75 μm、脉冲能量1 mJ、脉宽166 fs的脉冲，在进一步压缩脉冲宽度后，有望作为阿秒驱动源^[42]。除了重频的优势外，这些窄带激光系统的波长也长于钛宝石激光系统。通常泵浦光波长越长，中红外OPA系统转换效率越高。例如，掺钬(Ho)激光系统在中、远红外波段的OPA中极具优势。目前，掺钬激光系统可以输出中心波长2 μm、脉冲能量20 mJ、重频1 kHz的皮秒脉冲^[43]，用来泵浦OPA过程可以产生中心波长7 μm、脉冲能量0.75 mJ、脉冲宽度8个光周期的脉冲^[44]。

DC-OPA结合了传统OPA和OPCPA的优势，使用啁啾控制的高能量、宽光谱激光作为泵源^[45,46]。因此，与OPCPA相比，泵光光谱和啁啾的调节使DC-OPA具有更多的调节参数，可以产生更短的阿秒脉冲驱动光源；与

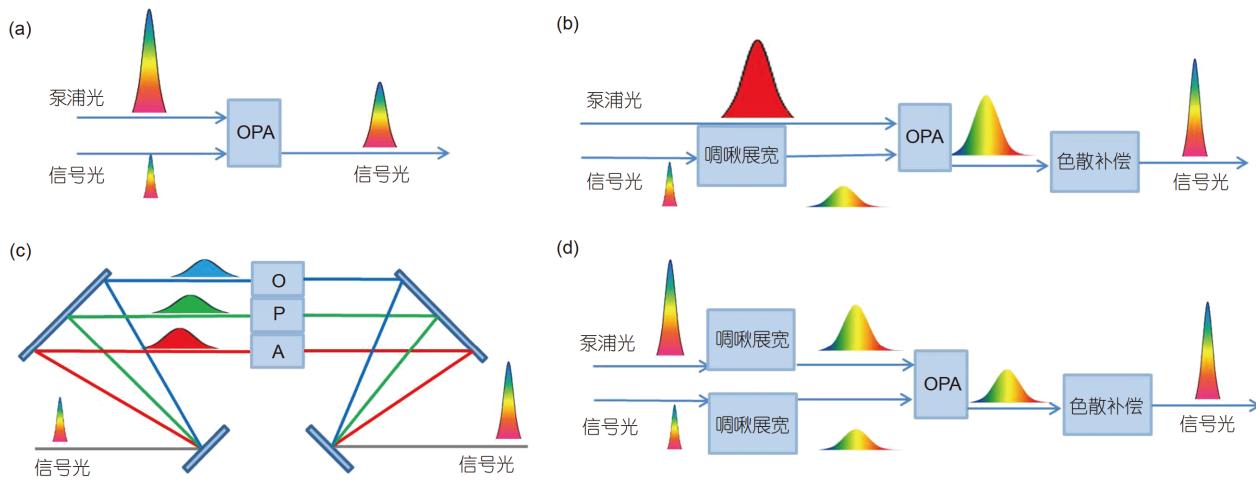


图2 (网络版彩色)OPA相关技术原理图. (a) OPA; (b) OPCPA; (c) FOPA; (d) DC-OPA
Figure 2 (Color online) Schematics of OPA. (a) OPA; (b) OPCPA; (c) FOPA; (d) DC-OPA

传统OPA相比, DC-OPA解决了能量瓶颈问题和由走离造成的光谱窄化问题. DC-OPA技术中, 种子光和泵浦光需要在参量放大过程之前分别进行啁啾展宽, 避免了由于光强太高而损伤非线性晶体, 因而可以获得高脉冲能量. DC-OPA技术在提高脉冲能量同时保证超短脉冲方面取得了明显的优势. 基于脉冲能量在亚焦耳量级的钛宝石激光系统, Fu等人^[47]首次使中红外超短飞秒脉冲能量突破100 mJ(图3), 比其他报道结果高近10~100倍.

在克服晶体损伤阈值的问题上, FOPA的技术思路有别于OPCPA和DC-OPA技术. OPCPA和DC-OPA是在时域上将脉冲展宽, 以降低脉冲峰值功率密度. FOPA技术通过光栅和凹面镜, 在空间上将不同频率分开并分别放大, 最后再将所有的频率成分合束(图2(c)). 该技术可以通过在傅里叶平面上叠加多个晶体, 同时实现不同频率成分的相位匹配. 通过FOPA技术, 目前已经获得了1.8 μm、30 mJ、11.6 fs的激光脉冲^[48]. 最近, 研究人员结合FOPA和DFG产生了9.5 μm的少周期长波中红外脉冲^[49]. 但是, 该技术在OPA过程中使用了光栅对, 环境震动和空气扰动会增加CEP的不稳定性, 在100个脉冲平均的情况下, CEP抖动值为460 mrad(rms)^[50], CEP稳定性较差, 不利于阿秒脉冲产生, 因此需要主动反馈以稳定CEP.

2.2 长脉宽阿秒脉冲驱动光源

相比于少周期阿秒脉冲驱动光源, 长阿秒脉冲驱动光源比较容易获得高功率和高脉冲能量, 可应用于

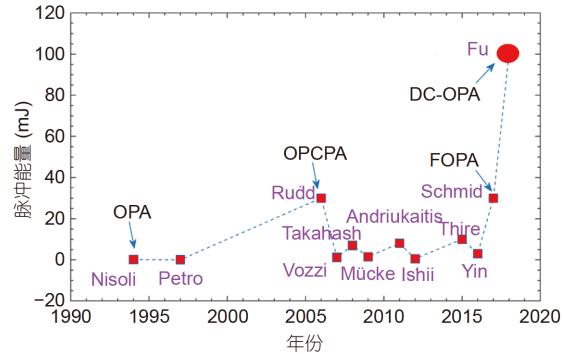


图3 (网络版彩色)自1994年以来基于OPA相关技术的中红外脉冲能量变化
Figure 3 (Color online) The development of mid-infrared pulse energy basing on OPA since 1994

高能量孤立阿秒脉冲和阿秒脉冲链的产生.

通过使用长脉冲和相关选通技术(见1节)结合, 可以降低孤立阿秒脉冲产生难度, 并有利于获得大能量孤立阿秒脉冲. 2009年, Feng等人^[21]对钛宝石CPA系统的输出脉冲进行频谱调制, 通过抑制增益窄化效应, 将脉宽由35 fs压缩至28 fs, 最后通过GDOG技术产生了脉宽148 as的孤立阿秒脉冲. Takahashi等人^[7]利用双色场方法获得了脉冲能量高达1.3 μJ、脉宽500 as的孤立阿秒脉冲. 该驱动光由脉冲能量9 mJ的800 nm脉冲和脉冲能量2.5 mJ的1300 nm脉冲组成. 其中, 800 nm脉冲来自钛宝石激光系统, 脉宽为30 fs; 1300 nm脉冲通过OPA过程获得, 脉宽为40 fs.

长脉宽阿秒脉冲驱动光源也被用于阿秒脉冲链的产生. 例如, 钛宝石激光系统能输出脉宽数10 fs的脉冲,

该脉冲可直接作为阿秒脉冲链的驱动源。2001年，研究人员将钛宝石激光(40 fs、3 mJ、1 kHz)聚焦于Ar气，利用产生的高次谐波得到脉宽为250 as的阿秒脉冲链^[51]。为获得更高重频的阿秒脉冲链，研究人员利用空心光纤将掺镱光纤激光系统输出脉冲压缩至40 fs(ELI-ALPS HR系统)，再与Ar气作用，产生了重频100 kHz、脉宽290 as的阿秒脉冲链^[52]。

3 阿秒脉冲驱动光源的发展方向

3.1 驱动光波长向长波发展

阿秒科学发展的早期，基于钛宝石(中心波长0.8 μm附近)的激光系统一直作为阿秒脉冲驱动光源的主要选择。然而，该驱动光的波长将阿秒脉冲频谱限制在100 eV以下的极紫外波段，无法达到应用范围更广的软X射线波段。为了获得光子能量更高的阿秒脉冲，需要波长更长的驱动激光。近些年来，为了突破阿秒驱动源的波长限制，以OPA相关技术为核心的中、远红外的阿秒驱动源成为研究热点(图4)^[34,39,40,44,53~63]。

在中红外波段，OPA过程的泵浦源一般包括钛宝石激光器、掺镱激光系统和掺钕激光系统等。在1~2 μm，硼酸铋(BiB₃O₆, BIBO)非线性晶体具有非常优异的特性。BIBO除了具有较大的有效非线性系数、高损伤阈值、不易潮解等特性，其最大的优势是在1~2 μm波段具有极宽的相位匹配带宽。当以钛宝石激光作为OPA过程的泵浦光时，在1.1~2.4 μm具有很宽的位相匹配带宽^[63]，因而可以获得1.7 μm、3 mJ、11.4 fs、1 kHz的高能量超短脉冲^[64]，并已经成功用于软X射线波段孤立阿秒的产生^[4]。但是，由于BIBO在2.5 μm以上波段具有较高的吸收，因此无法获得波长更长的激光脉冲。在2~4 μm波段，周期极化铌酸锂(periodically poled lithium niobate, PPLN)、砷酸钛氧钾(KTiOAsO₄, KTA)、掺氧化镁铌酸锂(MgO:LN)非线性晶体都取得了不错的实验结果^[65,66]。Fu等人^[67]基于MgO:LN晶体更是获得了3.3 μm、21 mJ的太瓦级飞秒光脉冲。基于KTA晶体^[53]，Wang等人^[34]获得了4 μm、2.6 mJ、21.5 fs、100 Hz的CEP稳定的脉冲。

在远红外波段(>5 μm)，ZGP晶体具有高非线性系数、高损伤阈值、高热传导率、透过窗口覆盖1.9~10 μm等特点，在远红外波段的OPA中具有极高的潜力^[68]。但是，由于透过窗口的限制，该晶体的泵浦光波长必须>1.9 μm，因此掺Yb、Nd以及钛宝石激光系统并不适

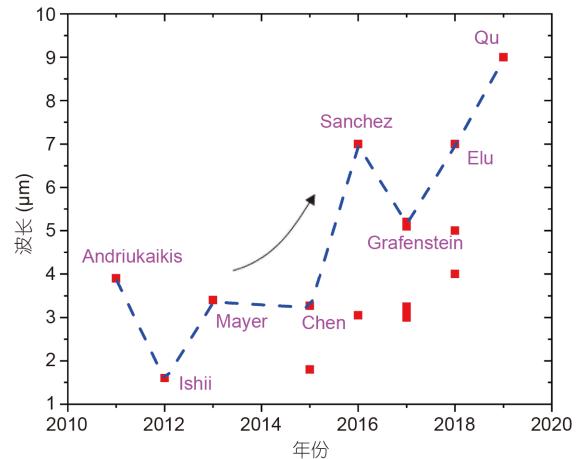


图4 (网络版彩色)阿秒驱动光源波长的实验进展

Figure 4 (Color online) The progress of attosecond driving pulse on wavelength

用。掺Ho激光系统可以输出2.05 μm波长的高能量皮秒脉冲。目前，掺Ho激光系统可以输出中心波长2 μm、脉冲能量20 mJ、重频1 kHz的皮秒脉冲^[43]。利用掺Ho激光系统，研究人员已获得波长7 μm的少周期激光脉冲^[54]。

3.2 驱动光源向高功率发展

通过高次谐波方法产生阿秒脉冲的转换效率较低^[69]。特别是，阿秒脉冲的产生效率随波长增加而迅速降低($\lambda^{-(5\sim 6)}$)^[70]。因此，为了提高阿秒脉冲的功率，驱动光源需向高功率发展。图5(a)为基于OPA技术的阿秒驱动光源重频与脉冲能量的实验进展^[55~62,71~76]，图5(b)为平均功率的发展趋势。除了基于CPA和OPA技术外，高功率激光也可通过多光束合成的方法获得^[77]。2018年，Müller等人^[78]通过对多束光纤激光的合成，得到了平均功率3.5 kW、脉宽430 fs、重频80 MHz的超短脉冲。

在一些阿秒脉冲应用中，高重频高功率的阿秒脉冲是必要的选择。例如，通过将阿秒脉冲与光电子显微镜(photoemission electron microscopy, PEEM)结合，可以获得较高的时间和空间分辨率，为同时从时间和空间研究纳米结构金属表面等离子体场的超快过程提供了技术基础^[79]。然而，由于空间电荷效应，单个脉冲与样品产生光电子时，光电子间的库仑作用会对探测结果造成极大干扰。在这类阿秒光电子谱实验中，单个激光脉冲产生的光电子数量受限。为了减少实验数据的采集时间，研究人员必须提高阿秒脉冲的重复频率。2019年，

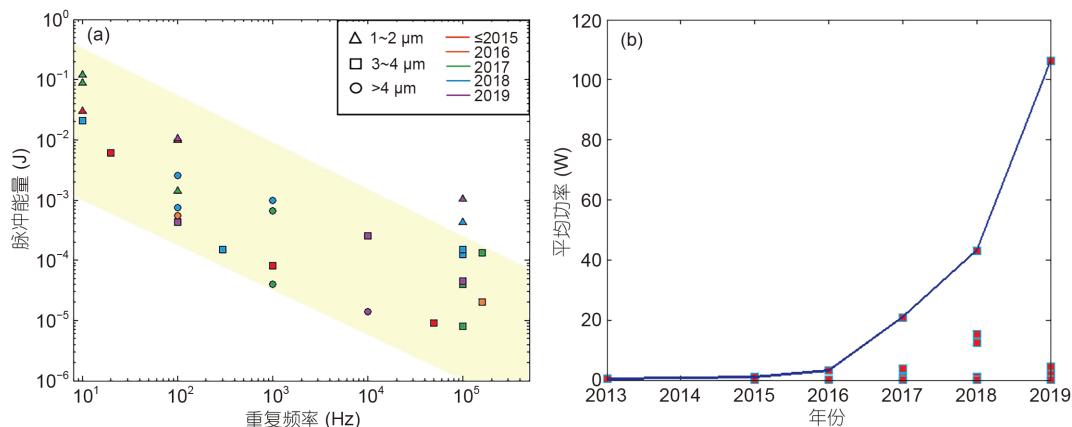


图 5 基于OPA技术的阿秒驱动激光高功率发展趋势. (a) 基于OPA相关技术的重复频率与脉冲能量的实验进展; (b) 平均功率的实验进展. (a) 中三角形点代表1~2 μm波段, 正方形点代表3~4 μm波段, 圆形点代表4 μm以上波段; 不同颜色对应不同的年份, 红色代表2015年之前, 橙色代表2016年, 绿色代表2017年, 蓝色代表2018年, 紫色代表2019年

Figure 5 High power trend of attosecond driving laser based on OPA. (a) Progress of repetition rate and pulse energy based on OPA; (b) progress of average power. In (a), triangle points represent wavelength of 1~2 μm; square points represent wavelength of 3~4 μm; circular points represent wavelength above 4 μm. Different color represents different years: Red, before 2015; orange, 2016; green, 2017; blue, 2018; purple, 2019

研究人员利用重频高达18.4 MHz的阿秒脉冲链, 将阿秒光电子谱实验的计数率提高了2~3个数量级^[80].

大能量高功率的阿秒脉冲驱动光源同样是未来重要的发展趋势. 基于松聚焦^[69], 研究人员可以通过大能量的驱动光源获得大能量的阿秒脉冲. 目前, 研究人员已获得脉冲能量10 μJ的阿秒脉冲链^[52]和1.3 μJ的孤立阿秒脉冲^[7]. 大能量的阿秒脉冲可用于阿秒非线性的研究. 虽然目前大能量的阿秒脉冲驱动光源已经有十分显著的实验成果, 但此类结果的重频较低, 通常在10 Hz量级. 低重复频率增加了采集必要实验数据的时间, 对系统的稳定性提出了很高的要求. 因此, 该类阿秒脉冲通常用于单发实验, 在一个脉冲内获得必要的实验数据.

4 总结

从2001年第一个阿秒脉冲产生以来, 阿秒脉冲从650 as缩短到43 as, 每一次阿秒脉冲纪录的刷新都伴随着阿秒脉冲驱动激光技术的进步. 虽然目前阿秒脉冲产生和应用都已取得了重要进展, 但是多学科领域的研究需要阿秒光源具有更高的能量、更高的重频、更高的光子能量和更短的脉宽. 因此, 人们对下一代阿秒脉冲驱动光源提出了更高的性能要求, 同时具有高脉冲能量、高重复频率(如10~100 kHz)、长波长(如3~10 μm)、短脉冲(单光周期甚至亚周期)、CEP稳定、输出稳定的阿秒驱动光源是未来的发展趋势, 同时其也带来了高热效应、光学元件损伤、大尺寸非线性晶体生长和加工等一系列挑战.

参考文献

- Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 2002, 419: 803–807
- Kuleff A I, Breidbach J, Cederbaum L S. Multielectron wave-packet propagation: General theory and application. *J Chem Phys*, 2005, 123: 044111
- Ciappina M F, Pérez-Hernández J A, Landsman A S, et al. Attosecond physics at the nanoscale. *Rep Prog Phys*, 2017, 80: 054401
- Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- Chang Z H, Corkum P B. Attosecond photon sources: The first decade and beyond. *Opt Soc Am B*, 2010, 27: 9–10
- Takahashi E J, Lan P, Mücke O D, et al. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses. *Nat Commun*, 2013, 4: 2691
- Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617
- Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891–3893
- 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

- 11 Baeva T, Gordienko S, Pukhov A. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Phys Rev E*, 2006, 74: 046404
- 12 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder. *Nature*, 2004, 427: 817–821
- 13 Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 2006, 314: 443–446
- 14 Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K, et al. Dramatic enhancement of high-order harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 153904
- 15 Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 2001, 291: 1923–1927
- 16 Okino T, Furukawa Y, Nabekawa Y, et al. Direct observation of an attosecond electron wave packet in a nitrogen molecule. *Sci Adv*, 2015, 1: 1500356
- 17 Wang H, Chini M, Chen S, et al. Attosecond time-resolved autoionization of argon. *Phys Rev Lett*, 2010, 105: 143002
- 18 Chini M, Zhao K, Chang Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nat Photonics*, 2014, 8: 178–186
- 19 Ferrari F, Calegari F, Lucchini M, et al. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields. *Nat Photonics*, 2010, 4: 875–879
- 20 Pfeifer T, Gallmann L, Abel M J, et al. Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field. *Opt Lett*, 2006, 31: 975–977
- 21 Feng X, Gilbertson S, Mashiko H, et al. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers. *Phys Rev Lett*, 2009, 103: 183901
- 22 Wheeler J A, Borot A, Monchocé S, et al. Attosecond lighthouses from plasma mirrors. *Nat Photonics*, 2012, 6: 829–833
- 23 Ouillé M, Vernier A, Böhle F, et al. Relativistic-intensity near-single-cycle light waveforms at kHz repetition rate. *Light Sci Appl*, 2020, 9: 47
- 24 Jeong Y G, Piccoli R, Ferachou D, et al. 33-fold pulse compression down to 1.5 cycles in a 6-m-long hollow-core fiber. *EPJ Web Conf*, 2019, 205: SW3N.2
- 25 Cardin V, Thiré N, Beaulieu S, et al. 0.42 TW 2-cycle pulses at 1.8 μm via hollow-core fiber compression. *Appl Phys Lett*, 2015, 107: 181101
- 26 He P, Liu Y, Zhao K, et al. High-efficiency supercontinuum generation in solid thin plates at 0.1 TW level. *Opt Lett*, 2017, 42: 474–477
- 27 Lu C H, Wu W H, Kuo S H, et al. Greater than 50 times compression of 1030 nm Yb:KGW laser pulses to single-cycle duration. *Opt Express*, 2019, 27: 15638–15648
- 28 Kaumanns M, Pervak V, Kormin D, et al. Multipass spectral broadening of 18 mJ pulses compressible from 13 ps to 41 fs. *Opt Lett*, 2018, 43: 5877–5880
- 29 Lavenu L, Natile M, Guichard F, et al. High-power two-cycle ultrafast source based on hybrid nonlinear compression. *Opt Express*, 2019, 27: 1958–1967
- 30 Nisoli M, De Silvestri S, Svelto O. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Appl Phys Lett*, 1996, 68: 2793–2795
- 31 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. *Appl Phys Lett*, 2005, 86: 111116
- 32 Chen X, Jullien A, Malvache A, et al. Generation of 43 fs, 1 mJ laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber. *Opt Lett*, 2009, 34: 1588–1590
- 33 Fan G, Balciunas T, Kanai T, et al. Mid-IR pulse post-compression in hollow-core waveguide. *OSA Technical Digest*, 2016, HS4B.2
- 34 Wang P, Li Y, Li W, et al. 26 mJ/100 Hz CEP-stable near-single-cycle 4 μm laser based on OPCPA and hollow-core fiber compression. *Opt Lett*, 2018, 43: 2197–2200
- 35 Lu C H, Tsou Y J, Chen H Y, et al. Generation of intense supercontinuum in condensed media. *Optica*, 2014, 1: 400–406
- 36 Seo M, Tsendsuren K, Mitra S, et al. High-contrast, intense single-cycle pulses from an all thin-solid-plate setup. *Opt Lett*, 2020, 45: 367–370
- 37 Tsai C L, Meyer F, Omar A, et al. Efficient nonlinear compression of a mode-locked thin-disk oscillator to 27 fs at 98 W average power. *Opt Lett*, 2019, 44: 4115–4118
- 38 Balla P, Bin Wahid A, Sytcevich I, et al. Postcompression of picosecond pulses into the few-cycle regime. *Opt Lett*, 2020, 45: 2572–2575
- 39 Thiré N, Beaulieu S, Cardin V, et al. 10 mJ 5-cycle pulses at 1.8 μm through optical parametric amplification. *Appl Phys Lett*, 2015, 106: 091110
- 40 Ishii N, Kaneshima K, Kitano K, et al. Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 16 μm from a BiB₃O₆ optical parametric chirped-pulse amplifier. *Opt Lett*, 2012, 37: 4182–4184
- 41 Vozzi C, Calegari F, Benedetti E, et al. Millijoule-level phase-stabilized few-optical-cycle infrared parametric source. *Opt Lett*, 2007, 32: 2957–2959
- 42 Windeler M K R, Mecseki K, Miahnahri A, et al. 100 W high-repetition-rate near-infrared optical parametric chirped pulse amplifier. *Opt Lett*, 2019, 44: 4287–4290
- 43 Vaupel A, Bodnar N, Webb B, et al. Concepts, performance review, and prospects of table-top, few-cycle optical parametric chirped-pulse

- amplification. *Opt Eng.* 2014, 53: 051507
- 44 Elu U, Steinle T, Sánchez D, et al. Table-top high-energy 7 μm OPCPA and 260 mJ Ho:YLF pump laser. *Opt Lett.* 2019, 44: 3194–3197
- 45 Zhang Q, Takahashi E J, Mücke O D, et al. Dual-chirped optical parametric amplification for generating few hundred mJ infrared pulses. *Opt Express.* 2011, 19: 7190–7212
- 46 Fu Y, Takahashi E J, Midorikawa K. High-energy infrared femtosecond pulses generated by dual-chirped optical parametric amplification. *Opt Lett.* 2015, 40: 5082–5085
- 47 Fu Y, Midorikawa K, Takahashi E J. Towards a petawatt-class few-cycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification. *Sci Rep.* 2018, 8: 7692
- 48 Gruson V, Ernotte G, Lassonde P, et al. 25 TW, two-cycle IR laser pulses via frequency domain optical parametric amplification. *Opt Express.* 2017, 25: 27706–27714
- 49 Leblanc A, Dalla-Barba G, Lassonde P, et al. High-field mid-infrared pulses derived from frequency domain optical parametric amplification. *Opt Lett.* 2020, 45: 2267–2270
- 50 Schmidt B E, Thiré N, Boivin M, et al. Frequency domain optical parametric amplification. *Nat Commun.* 2014, 5: 3643
- 51 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
- 52 Hammerland D, Zhang P, Kühn S, et al. Reconstruction of attosecond pulses in the presence of interfering dressing fields using a 100 kHz laser system at ELI-ALPS. *J Phys B-At Mol Opt Phys.* 2019, 52: 23LT01
- 53 Chen Y, Li Y, Li W, et al. Generation of high beam quality, high-energy and broadband tunable mid-infrared pulse from a KTA optical parametric amplifier. *Opt Commun.* 2016, 365: 7–13
- 54 Sanchez D, Hemmer M, Baudisch M, et al. 7 μm , ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 μm . *Optica.* 2016, 3: 147–150
- 55 Andriukaitis G, Balčiūnas T, Diomin I, et al. Mid-IR few-cycle pulses approaching a 0.1 TW peak power. In: 2011 Conference on Lasers and Electro-Optics: Laser Science to Photonic Applications, CLEO 2011. 2011, CW13
- 56 von Grafenstein L, Bock M, Ueberschaer D, et al. 5 μm few-cycle pulses with multi-gigawatt peak power at a 1 kHz repetition rate. *Opt Lett.* 2017, 42: 3796–3799
- 57 Bock M, Grafenstein L, Griebner U, et al. Generation of millijoule few-cycle pulses at 5 μm by indirect spectral shaping of the idler in an optical parametric chirped pulse amplifier. *J Opt Soc Am B-Opt Phys.* 2018, 35: 19–24
- 58 Qu S, Liang H, Liu K, et al. 9 μm few-cycle optical parametric chirped-pulse amplifier based on LiGaS₂. *Opt Lett.* 2019, 44: 2422–2425
- 59 Mayer B W, Phillips C R, Gallmann L, et al. Sub-four-cycle laser pulses directly from a high-repetition-rate optical parametric chirped-pulse amplifier at 3.4 μm . *Opt Lett.* 2013, 38: 4265–4268
- 60 Thiré N, Maksimenka R, Kiss B, et al. 4-W, 100-kHz, few-cycle mid-infrared source with sub-100-mrad carrier-envelope phase noise. *Opt Express.* 2017, 25: 1505–1514
- 61 Baudisch M, Pires H, Ishizuki H, et al. Sub-4-optical-cycle, 340 MW peak power, high stability mid-IR source at 160 kHz. *J Opt.* 2015, 17: 094002
- 62 Elu U, Baudisch M, Pires H, et al. High average power and single-cycle pulses from a mid-IR optical parametric chirped pulse amplifier. *Optica.* 2017, 4: 1024–1029
- 63 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 Opt.* 2015, 17: 094001
- 64 Yin Y C, Li J, Ren X M, et al. High-efficiency optical parametric chirped-pulse amplifier in BiB₃O₆ for generation of 3 mJ, two-cycle, carrier-envelope-phase-stable pulses at 1.7 μm . *Opt Lett.* 2016, 41: 1142–1145
- 65 Deng Y P, Schwarz A, Fattahi H, et al. Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μm . *Opt Lett.* 2012, 37: 4973–4975
- 66 Thiré N, Maksimenka R, Kiss B, et al. Highly stable, 15 W, few-cycle, 65 mrad CEP-noise mid-IR OPCPA for statistical physics. *Opt Express.* 2018, 26: 26907–26915
- 67 Fu Y, Xue B, Midorikawa K, et al. TW-scale mid-infrared pulses near 3.3 μm directly generated by dual-chirped optical parametric amplification. *Appl Phys Lett.* 2018, 112: 241105
- 68 Schunemann P G, Zawilski K T, Pomeranz L A, et al. Advances in nonlinear optical crystals for mid-infrared coherent sources. *J Opt Soc Am B-Opt Phys.* 2016, 33: 36–43
- 69 Takahashi E, Nabekawa Y, Midorikawa K. Generation of 10- μJ coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics. *Opt Lett.* 2002, 27: 1920–1922
- 70 Colosimo P, Doumy G, Blaga C I, et al. Scaling strong-field interactions towards the classical limit. *Nat Phys.* 2008, 4: 386–389
- 71 Fu Y, Takahashi E J, Zhang Q, et al. Optimization and characterization of dual-chirped optical parametric amplification. *J Opt.* 2015, 17: 124001
- 72 Bridger M, Naranjo-Montoya O A, Tarasevitch A, et al. Towards high power broad-band OPCPA at 3000 nm. *Opt Express.* 2019, 27: 31330–31337
- 73 de Faria Pinto T, Mathijssen J, Eikema K S E, et al. Optical parametric chirped pulse amplifier producing ultrashort 105 mJ pulses at 155 μm . *Opt*

[Express](#), 2019, 27: 29829–29837

- 74 Lu F, Xia P, Matsumoto Y, et al. Generation of sub-two-cycle CEP-stable optical pulses at 35 μm from a KTA-based optical parametric amplifier with multiple-plate compression. [Opt Lett](#), 2018, 43: 2720–2723
- 75 Zou X, Li W, Liang H, et al. 300 μJ, 3 W, few-cycle, 3 μm OPCPA based on periodically poled stoichiometric lithium tantalate crystals. [Opt Lett](#), 2019, 44: 2791–2794
- 76 Kanai T, Lee Y, Seo M, et al. Supercontinuum-seeded, carrier-envelope phase-stable, 45-W, 38-μm, 6-cycle, KTA optical parametric amplifier driven by a 14-ps Yb:YAG thin-disk amplifier for nonperturbative spectroscopy in solids. [J Opt Soc Am B](#), 2019, 36: 2407–2413
- 77 Breitkopf S, Eidam T, Klenke A, et al. A concept for multiterawatt fibre lasers based on coherent pulse stacking in passive cavities. [Light Sci Appl](#), 2014, 3: 211
- 78 Müller M, Klenke A, Steinkopff A, et al. 35 kW coherently combined ultrafast fiber laser. [Opt Lett](#), 2018, 43: 6037–6040
- 79 Mikkelsen A, Schwenke J, Fordell T, et al. Photoemission electron microscopy using extreme ultraviolet attosecond pulse trains. [Rev Sci Instrum](#), 2009, 80: 123703
- 80 Saule T, Heinrich S, Schötz J, et al. High-flux ultrafast extreme-ultraviolet photoemission spectroscopy at 18.4 MHz pulse repetition rate. [Nat Commun](#), 2019, 10: 458

Summary for “阿秒脉冲驱动激光发展现状及展望”

Development and prospect on driving laser for attosecond pulse

Hao Yuan^{1,2}, Huabao Cao¹, Hushan Wang¹, Xin Liu^{1,2}, Xianwei Sun¹, Yishan Wang^{1*}, Wei Zhao^{1*} & Yuxi Fu^{1*}

¹ Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China;

² School of Future Technology, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

* Corresponding authors, E-mail: yswang@opt.ac.cn; weiz@opt.ac.cn; fuyuxi@opt.ac.cn

Attosecond light source is a new type of light source that was born at the beginning of the 21st century, which has a short pulse, broad spectrum, high temporal and spatial coherence and wide tunability, thus being widely employed in various research fields. From ultrafast motion of electrons in atoms to charge transfer in biological macromolecules, attosecond pulses is currently the only tool that can track and capture these ultrafast dynamics. Attosecond pulse enables us to investigate ultrafast dynamics of micro-world both in nanometer and attosecond scales. However, the mechanism of attosecond pulse generation is completely different from general ultrafast lasers. Instead, attosecond pulse is generated by a highly nonlinear interaction between strong ultrafast femtosecond laser and matter, which is called high-order harmonic generation (HHG). The mechanism of HHG can be understood by a classical three step model. First, an electron is ionized from an atom by a strong laser electric field through tunnel ionization. Then the free electron is accelerated by the laser field and gains energy. Finally, the electron recombines with the parent ion when the laser field changes its sign with emission of a photon, whose energy equals its kinetic energy gained in the laser field plus ionization potential of the atom. Apparently, HHG is strongly affected by the laser waveform. Several key parameters of driving laser, such as wavelength, intensity, and carrier envelope phase strongly affect the process of HHG. Thus, the characteristics of attosecond pulses are determined by the driving laser. The rapid development of attosecond pulse technology strongly depends on the development of driving laser technology. In the beginning, chirped pulse amplification (CPA) technology greatly promoted the development of attosecond light sources. The femtosecond CPA systems based on Ti:sapphire crystal has been the main driving laser to generate attosecond light pulses. The driving laser wavelength is in the near infrared region near 800 nm, which generally has a pulse duration of multiple optical cycles. By employing post-compression technology to shorten pulse durations of CPA systems to few-cycle, isolated attosecond pulses in the extreme ultraviolet (XUV) can be generated, which is called the first generation of attosecond light source. Recently, optical parametric amplification (OPA) systems have been widely used as driving laser due to its flexible wavelength tunability. Using OPA, longer driving laser wavelength up to the midinfrared (MIR) can be obtained, which pushes the attosecond pulses to the soft X-ray region, and has been called the second generation of attosecond light sources. Due to broad spectrum and higher photon energy, attosecond pulses have a shorter duration in the soft X-ray region compared with XUV region, given that the temporal chirp is properly compensated. In 2017, researchers generated soft X-ray isolated attosecond pulses, which was driven by mid-infrared pulses centered at 1.8 μm. These attosecond pulses, whose duration reaches 53 as and spectrum surpasses carbon K-edge, provide a tool for studying the ultrafast dynamics of diamond, graphene and other carbon materials. In this paper, we start with the principle of attosecond pulses generation based on HHG. Then, we introduce different technologies and their development for obtaining driving laser pulses for HHG. Finally, we introduce prospect on development of driving laser pulses for attosecond pulses generation.

attosecond, post-compression, optical parametric amplification, mid infrared, high power

doi: [10.1360/TB-2020-0594](https://doi.org/10.1360/TB-2020-0594)