



阿秒光学简史——2023年度诺贝尔物理学奖背后的故事

赵昆^{1,2}

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

E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn

北京时间10月3日, 瑞典皇家科学院在斯德哥尔摩宣布, 将2023年度诺贝尔物理学奖授予皮埃尔·阿戈斯蒂尼(Pierre Agostini)、费伦茨·克劳斯(Ferenc Krausz)和安妮·吕利耶(Anne L'Huillier), 以表彰他们为研究物质中电子动力学而产生阿秒光脉冲的实验方法(for experimental methods that generate attosecond pulses of light for the study of electron dynamics in matter)。一阿秒是一百亿亿分之一秒($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), 是极短极小的时间单位。按照诺贝尔奖官网给出的说法, 一阿秒之比于一秒相当于一秒之比于宇宙年龄。

皮埃尔·阿戈斯蒂尼, 现任美国俄亥俄州立大学(The Ohio State University)教授。1941年生于当时法属突尼斯(French protectorate of Tunisia, 现突尼斯共和国)的突尼斯城, 1961和1968年于法国马赛大学(Aix-Marseille University)获得学士和博士学位。2005年迁任现职。按照诺贝尔奖网站官方说法, 阿戈斯蒂尼获奖是因为在2001年产生并研究了一系列阿秒脉冲(在中文文献中有时称之为“阿秒脉冲串”), 其中每个脉冲的宽度是250 as^[1](succeeded in producing and investigating a series of consecutive light pulses, in which each pulse lasted just 250 attoseconds)。这是他在法国巴黎萨克雷中心(Centre d'Etudes de Saclay)任研究主任时的科研成果, 此后他一直在原子分子电离等方向开展研究工作。

费伦茨·克劳斯, 现任德国马克斯·普朗克量子光学研究所(Max Planck Institute of Quantum Optics)主任和慕尼黑大学(Ludwig-Maximilians-Universität München)教授。1962年生于匈牙利摩尔(Mór), 1985年之前就读于布达佩斯的罗兰大学(Eötvös Loránd University)和布达佩斯技术大学(Budapest University of Technology), 1991年于奥地利维也纳技术大学(Vienna University of Technology)获博士学位。2004年迁任现职。克劳斯获奖是因为在2001年研究了能够产生单独的阿秒脉冲或称“孤立阿秒脉冲”的实验并测出脉冲宽度为650 as^[2](working with another type of experiment, one that made it possible to isolate a single light pulse that lasted 650 attoseconds), 可以理解为是从阿戈斯蒂尼的阿秒脉冲串中提取出来一个。这是他在维也纳技术大学任教授时的科研成果, 此后他一直在飞秒激光、阿秒光源和电子动力学领域开展



赵昆 中国科学院物理研究所和松山湖材料实验室研究员。1995年, 于北京大学物理系获学士学位; 2006年, 于美国马里兰大学化学物理系获博士学位。2006年6月~2011年5月, 分别在美国内布拉斯加大学和堪萨斯州立大学从事博士后研究。2011年5月, 赴中佛罗里达大学任助理教授。2014年12月, 加入中国科学院物理研究所。2018年, 成为国际阿秒物理委员会委员。主要从事强场电离、阿秒光学、超快激光等领域的研究工作。

实验研究。

安妮·吕利耶, 现任瑞典隆德大学(Lund University)教授。1958年生于法国巴黎, 1980年于巴黎高等师范学院(École Normale Supérieure)获学士学位, 1986年于居里大学(Université Pierre et Marie Curie, 也称巴黎第六大学)获博士学位。1995年迁至隆德大学任副教授。吕利耶获奖是因为在1987年发现了激光与惰性气体相互作用产生高次谐波, 这是频率为入射激光频率整数倍的光辐射, 并指出这些谐波是由于电子在激光场中获得额外能量后再辐射的产物^[3](discovered that many different overtones of light arose when she transmitted infrared laser light through a noble gas. Each overtone is a light wave with a given number of cycles for each cycle in the laser light. They are caused by the laser light interacting with atoms in the gas; it gives some electrons extra energy that is then emitted as light)。高次谐波就是阿戈斯蒂尼后来测量的阿秒脉冲串, 是后续阿秒光学的实验和物理基础; 此时, 她在法国原子和表面物理服务处(Service de Physique des Atomes et des Surfaces)工作。此后, 她一直在原子电离、阿秒脉冲产生和电子动力学领域开展实验和理论研究。

此三人获奖也凸显了欧洲在超快光学科研究领域的领先地位。

1 超快光学

超快光学(ultrafast optics)是关于超短光脉冲产生和测量,以及利用超短光脉冲研究分子、原子和电子运动的科学领域。从应用角度讲,时间分辨谱学(time-resolved spectroscopy)使用脉冲宽度与所研究微观过程具有相同甚至更短时间尺度的超短光脉冲作为探测工具,能够获得物质中微观粒子运动过程或非平衡态的时序变化信息(chronoscopy)。

利用闪光研究物体运动的一个著名案例是频闪摄影(stroboscopic photography)。1930年左右,美国麻省理工学院的埃杰顿教授(Harold Eugene Edgerton, 1903~1990)发明了可以重复同步触发的高亮度电子闪光灯,也被称为频闪灯(strobe light),并将其应用到了高速摄影中^[4,5]。当环境中没有其他光源时,相机的底片只在闪光灯发光时才会曝光。第二次世界大战之后,随着技术的发展,埃杰顿闪光灯的持续时间进一步缩短,可以定格速度非常快的物体,比如出膛的子弹。图1中这两幅世界高速摄影史上的巨作——“牛奶皇冠”(Milk Drop Coronet)^[6]和“子弹穿苹果”(Bullet Through Apple)^[7]就是频闪摄影技术的代表。

宏观运动的速度相当有限,在毫秒或者微秒的时间尺度内,宏观物体的移动几乎可以忽略,但是微观粒子的运动速度则不可同日而语了。处于氢原子基态的电子绕氢原子核转一圈只需要大约一亿亿分之一秒,也就是100 as。在这种时间尺度上,闪光灯或者普通的非相干光源无能为力,只有激光才可能获得更短的光脉冲。由于激光,或者称为相干光,所包含的各光谱成分(不同颜色的光)具有相干性,各成分的相位差是固定的,因此可以实现脉冲压缩,从而获得持续时间极短的光脉冲,成为创造极限物理时间尺度的真实载体和研究微观世界中超快运动变化过程的最佳工具。

2 激光脉冲

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。这就不得不提到爱因斯坦(Albert Einstein, 1879~1955)的一项诺奖级的贡献。他在1916年提出了受激辐射的概念^[8],激光之名即源于此——Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation (LASER),就是受激辐射的光放大。普通光源,比如日光、火光、白炽灯、闪光灯等,都是自发辐射(spontaneous emission)源。而受激辐射是指发射出的光子与入射光子具有相同的能量、方向、偏振、相位等,这样产生的光子与入射光子是相干的,或者说激光是相干光,是一种与普通光源完全不同的光辐射。

在爱因斯坦提出激光理论40年之后,真正的受激辐射源才出现在实验室中。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1953年做成的,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)^[9,10]。1964年,汤斯和两位提出MASER理论^[11]的苏联科学家巴索夫(Nicolay Gennadiyevich Basov, 1922~2001)、普洛柴诺夫(Aleksandr Mikhailovich Prokhorov, 1916~2002)共同获得诺贝尔物理学奖。在可见光波段,美国休斯实验室的梅曼(Theodore Harold “Ted” Maiman, 1927~2007)在1960年实现了世界上第一台激光器^[12],输出波长694.3 nm,对应频率 4.3×10^{14} Hz(即光场每秒钟振荡430万亿次,图2),光子能量约1.8 eV(物理学中描述微观粒子时常用的一个能量单位)。这台激光器的重要性在于它提供了一种基于完全不同物理机制的崭新光源。

在激光出现之后,一方面是对超快现象研究的兴趣,另一方面是希望获得更高峰值功率——在平均功率相同的条件下,脉冲越短,峰值功率越高,人们不断追求更短的脉冲。随着一系列重要的技术突破,激光脉冲在20世纪末期达到了短至几飞秒的时间尺度^[13](图3)。这些突破也包括于2018年获得诺贝尔物理学奖的啁啾脉冲放大技术^[14,15]。同时,超短光脉冲对微观世界中超快运动的研究也为出生于埃及的美国化

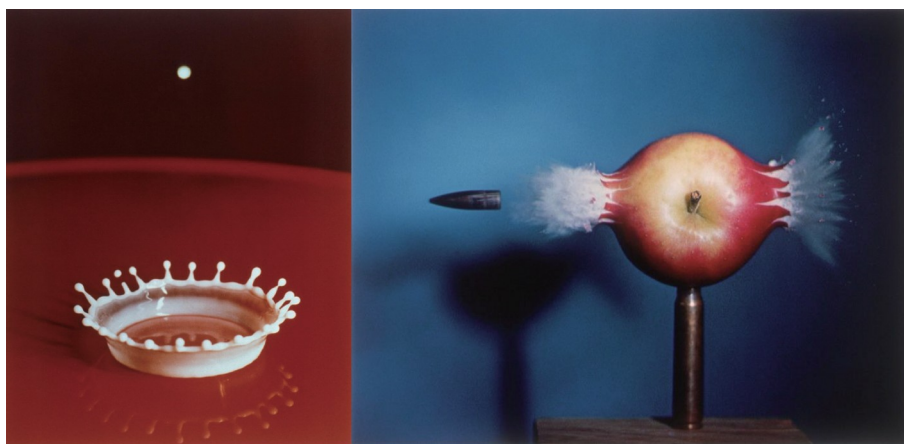


图1 (网络版彩色)艾杰顿拍摄的牛奶皇冠(1957年)^[6]和子弹穿苹果(1964年)^[7]照片

Figure 1 (Color online) Milk Drop Coronet (1957)^[6] and Bullet Through Apple (1964)^[7] by H. E. Edgerton

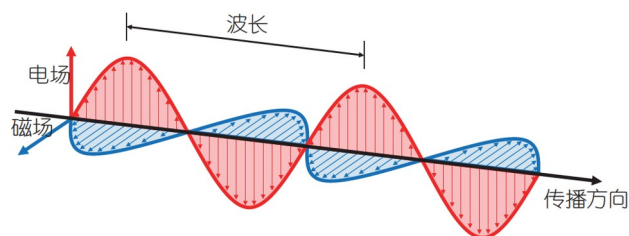


图2 (网络版彩色)光场是振荡的电场和磁场,其波长是电场或磁场强度两次达到最大值之间的距离,振荡频率是光速除以波长

Figure 2 (Color online) Light field is an oscillating electromagnetic field, whose wavelength is the distance between two maxima of the electric or magnetic field and oscillation frequency is the speed of light divided by the wavelength

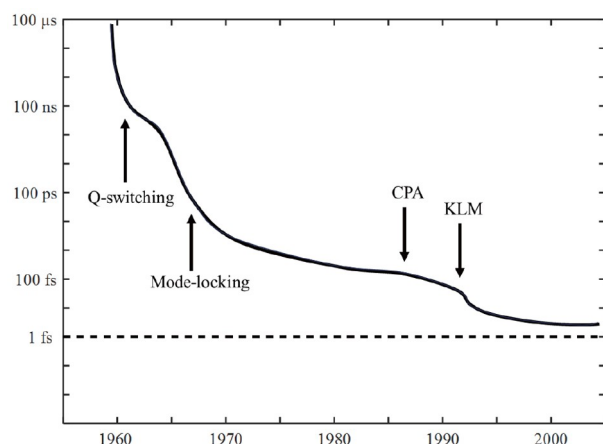


图3 激光脉冲长度的演化。箭头标示这一演变中的关键技术突破。图中飞秒壁垒清晰可见

Figure 3 Timeline of the laser pulse length evolution, where arrows mark key technical breakthroughs. The existence of a femtosecond barrier is clearly visible

学家艾哈迈德·哈桑·泽维尔(Ahmed Hassan Zewail, 1946~2016)于1999年带来诺贝尔化学奖,奖励他利用飞秒谱学对化学反应中过渡态的研究工作(for his studies of the transition states of chemical reactions using femtosecond spectroscopy),他也因此被称为飞秒化学(femtochemistry)的创始人^[16]。

泽维尔的诺贝尔化学奖主要是基于他对化学反应和分子运动的研究^[17],参与反应的各原子和原子集团的运动方式主要是转动、振动、解离等。这些运动的时间尺度在皮秒(ps, 10^{-12} s)到几十飞秒(fs, 10^{-15} s)的量级(图4),可以利用飞

秒激光脉冲开展瞬态谱学的研究工作。我们在日常生活中接触到的物理(和化学)现象,除去引力(重力)作用,绝大多数都是基于电磁相互作用,比如固体中的电声子散射、电子空穴耦合、载流子输运、超导相变;原子分子中的电子跃迁和电离;化学和生物反应中化学键的断裂和形成;尤其是光与物质的相互作用,例如光电效应、电偶极辐射,也包括激光本身;等等。这些现象的物理基础是带电粒子的相互作用及其动力学过程。电子是常见的带电粒子中质量最小的,比质子或原子核小3个数量级,在物理过程中响应速度最快,并引发和推动其他运动。因此,电子运动和电子关联是基于电磁相互作用的体系中最基础最核心的物理过程,也是目前超快光学研究的前沿内容。

但是,电子运动的时间尺度是在阿秒量级。现有最短的飞秒脉冲(大约1~2 fs)的光谱已经覆盖从红外到紫外波段^[18]。由于从红外到可见再到紫外各个光波段激光的产生、传播、压缩脉冲宽度的方法和技术都有很大区别,以此光谱为中心进一步展宽以求获得短至0.1 fs(100 as)左右的相干光脉冲从技术上讲是不可能的。从另一个角度看,中心波长在可见到近红外波段的光周期在1~3 fs左右,0.1 fs的脉冲就意味着一个1/10周期的脉冲,从原理上讲也是不可能实现的。获得更短光脉冲的唯一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。

3 强场电离

产生如此短波长(高频率)的相干光,需要与普通激光不一样的方法。这里就不得不提到爱因斯坦的另一项诺奖级贡献(而且这次真的获奖了)。1905年,爱因斯坦发表了他最著名的研究成果之一——光电效应^[19],也因此获得了1921年的诺贝尔物理学奖(for his services to theoretical physics, and especially for his discovery of the law of the photoelectric effect)。但该奖是在一年后的1922年颁发的,因为在1921年的评选过程中,诺贝尔物理学奖委员会认为当年的提名都不符合标准。根据章程,在这种情况下,诺贝尔奖可以保留到下一年。1922年,委员会使用这一章程把1921年的诺贝尔物理学奖颁给了爱因斯坦。正式的1922年度诺贝尔物理学奖则因原子结构和光谱颁给了丹麦物理学家尼尔斯·玻尔(Niels Henrik David Bohr, 1885~1962)。

爱因斯坦将光描述为一群离散的量子(现在称为光子),而不是连续的波动。被光照射时,金属中的电子只能吸收一



图4 (网络版彩色)微观运动的时间尺度

Figure 4 (Color online) Time scale of microscopic motion

个光子的能量(或者不吸收),而不能吸收光子能量的一部分。同时,光子的能量等于频率乘以一个常数(普朗克常数)。假若光子的频率大于某阈值,则拥有足够能量来使一个电子逃离金属,造成光电效应。就好像一个人在井里,如果他获得足够的力气(能量)跳上井沿(阈值),他就自由了。金属材料中,这个能量阈值通常称为“逸出功(work function)”,数值是几个电子伏特,对应紫外波段的光子能量。

在气体原子中也有类似的情况。如图5最左边的一帧,电子在原子核的库仑电场中,犹如限制在一口井里。如想摆脱原子核的束缚进入自由状态,也需要吸收一定的能量,在原子物理中这个过程叫做“电离(ionization)”,这个阈值能量称为“电离能(ionization potential)”,数值比金属的逸出功大几倍。在强度比较高的激光场中,电子还有可能一次吸收多个光子,当这些光子的总能量超过电离能时,电子也可以进入自由态,这个过程被称为“多光子电离”。就好像人在井里架个梯子一步步向上走出来。但是后来人们发现,在常用的中心波长在可见光到红外光波段的激光场中,原子的电离过程要稍微复杂一点。当激光场中的电场强度高到可以和原子内部的库仑场相比时,库仑场就会发生形变,类似图5中第二帧,右侧的井沿被激光场压低了。虽然还不能像拿杯子倒水那样把电子倒出来,但这一侧的井沿已经只剩一个小土包了,在物理学中这叫“势垒(potential barrier)”。根据量子力学,在井中的电子是有可能穿过势垒进入自由态的,这个过程被称为“隧穿电离(tunneling ionization)”,这是在可见到红外波段的较强激光场中原子电离的主要形式(图5中第二帧)。而当激光场进一步增强,势垒被压弯到比电子能量还低时,电离就真的会变得像拿杯子倒水那样容易,几率大幅度提高,这种隧穿电离的特殊情况有时也被称为“过垒电离(over-the-barrier ionization)”。

在激光刚刚问世不久的1963年,美国俄亥俄州立大学的Damon和Tomlinson^[20]以及联合飞行器实验室的Meyerand Jr.和Haught^[21]分别利用红宝石激光器进行了气体电离实验。1965年,苏联科学院列别捷夫物理研究所的凯尔迪什(L. V.

Keldysh, 1931~2016)提出了激光电离理论^[22]。1979年,在法国萨克雷中心工作的阿戈斯蒂尼等人^[23]观察到了阈上电离(above threshold ionization, ATI)现象,这其实是他对阿秒光学研究领域的第一笔贡献。

在那个时期的电离实验中,随着激光强度的提高,人们发现观察到的光电子有可能具有很高的能量。在爱因斯坦的光电效应中,光电子的能量是光子能量减去金属的逸出功。在隧穿电离中,按说也可以理解成电子吸收了 N 个光子的能量,其动能是 N 个光子的总能量减去原子的电离能,应该小于一个光子能量。但是在实验中,除了上述这种情况,人们还观察到更高能量的电子,并且其能量呈现一个个分立的谱线,间隔一个光子能量,就好像除了达到电离阈值以外电子又多吸收了若干光子的能量。这种现象就被称为“阈上电离”,就像井里那个人架起了一个比井口还高的梯子,等他爬到梯子顶上时比井口高了不少。阿戈斯蒂尼在文章中展示了测量结果,并认为电子是在隧穿电离离开原子核的库仑场之后在激光场中获得的额外能量。这个过程已经是产生阿秒脉冲的前奏了。

1989年, Augst等人^[24]发表了过垒电离的实验和理论文章。1994年, Paulus等人^[25]发表了惰性气体原子阈上电离的更详细实验结果,并指出了光电子的产额有一个平台区。这一系列工作发展出了强激光场电离(简称“强场电离”)这一研究领域。

4 高次谐波

1987和1988年,美国伊利诺伊大学芝加哥分校的McPherson等人^[26]及吕利耶等人^[3]分别观察到激光电离过程中的高次谐波,其频率为入射激光频率整数倍,但是McPherson等人^[26]并未说清其产生机理,而吕利耶等人^[3]的文章指出这些谐波是由于电子在激光场中获得额外能量后再辐射的产物^[3]。高次谐波光谱结构如图6所示,包括低频率的微扰谐波区、中间的平台区和高频部分的截止区。其中平台区是高次谐波的显著特征,显示此类辐射是与激光的受激辐射或非

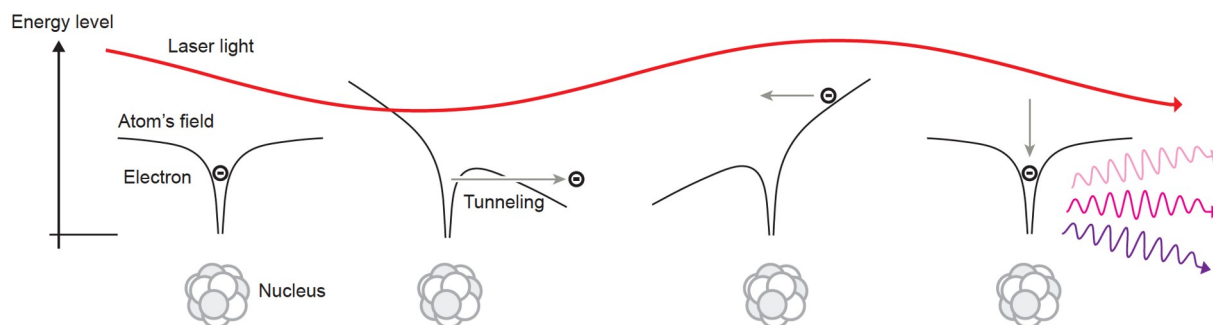


图5 (网络版彩色)激光照射原子产生高次谐波的原理。© Johan Jarnestad/The Royal Swedish Academy of Sciences

Figure 5 (Color online) Principle of high harmonic generation by laser irradiation of atoms. © Johan Jarnestad/The Royal Swedish Academy of Sciences

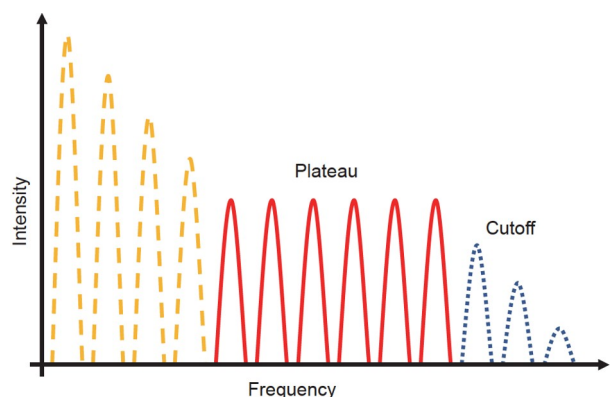


图6 (网络版彩色)高次谐波光谱示意图。虚线: 微扰谐波区, 实线: 平台区(plateau), 点线: 截止区(cutoff)

Figure 6 (Color online) A generic high harmonic generation spectrum. Dashed-line: Perturbation harmonics; solid-line: The plateau; and dotted-line: The cutoff

线性光学中的低次微扰谐波及参量过程等简单的偶极辐射不同的一种光源。惰性气体原子在激光场中产生高次谐波和阈上电离其实是对同一物理过程从两个角度观察的结果——如果观测出射电子, 就会看到阈上电离的光电子; 如果观测出射光子, 就会看到高次谐波。此处的平台区和前述Paulus^[25]文章中展示的阈上电离光电子能谱中的平台区是一致的。

高次谐波中的平台区和截止区来自阈上电离的电子在激光场中获得动能后与失去电子的离子重新结合释放出的光子。苏联科学院约费物理技术研究所的Kuchiev^[27]在1987年就已经提出了电离后电子在激光场中二次散射的两步模型来解释阈上电离的光电子能谱, 与阿戈斯蒂尼^[23]1979年文章提出的机理类似。1993年, 美国劳伦斯·利弗莫尔和布鲁克海文国家实验室的Schafer等人^[28]也提出了电子散射的两步模型, 就是初始电离和电子在激光场中的加速, 并且把阈上电离和高次谐波合并解释。同年稍晚, 加拿大国家研究委员会的Corkum^[29]详细阐述了强场电离的半经典三步模型, 头两步仍然是电离和电子在激光场中的加速, 而根据第三步的不同解释了紧密相关的三种现象。如图5中的第二帧, 电子在隧穿电离后离开原子, 形成自由电子和一个离子。但是这个电子仍然处于激光的电场之中, 会被激光场加速而获得动能。由于激光场是交变电场, 当电场方向改变时电子就有可能被拽回到离子附近, 如图5第三帧所示。此时, 电子与离子在激光场影响下的相互作用有3种可能的形式: 一种是非弹性散射, 简单说就是电子把离子中的另一个电子撞飞了, 导致双电子电离; 第二种是弹性散射, 没有能量交换, 观测的结果就是阈上电离; 第三种是电子与离子复合, 如图5第四帧所示, 将电子在激光场中获得的能量以一个光子的形式释放出来, 就是高次谐波光子; 由于能量处于平台区的光电子与离子复合产生光子的几率接近, 就在这里出现了强度相似的一系列

谐波。这个三步模型成为高次谐波和阿秒光学的原始理论基础。次年, 吕利耶及Corkum等人^[30]合作发表了对三步模型的全量子力学计算, 至今仍是此类理论计算所采用的方法。

高次谐波波长约几十纳米, 位于极紫外波段, 其光场周期只有几十阿秒; 而且由于高次谐波源于激光电离后的电子加速与复合过程, 是一种类激光光源, 具有产生像阿秒脉冲这样超短脉冲所需的相干性。事实上, 由于电子电离、加速和复合这三个步骤只能发生在激光场振荡周期中某些特定的时间点, 在入射飞秒激光脉冲的每个光周期中会辐射两次, 形成两个阿秒脉冲, 所观察到的高次谐波本身就是一个阿秒脉冲串。高次谐波梳齿状的光谱结构也正来源于这一串在时间上等间距且具有相干性的阿秒脉冲发生光谱干涉的结果。1994年, Corkum等人^[31]进一步提出了利用高次谐波产生孤立阿秒光脉冲(区别于高次谐波对应的阿秒脉冲串)的选通理论和方法。孤立阿秒脉冲继承飞秒激光脉冲的重复频率、相干性、方向性, 是具有超短时间包络的类激光辐射, 并可与驱动脉冲精确同步, 是目前人类掌握的可用于瞬态测量的最短工具^[32]。

5 阿秒脉冲

在20世纪的最后几年, 人们已经很清楚频域上的高次谐波就是时域上的阿秒脉冲串, 但是真正在实验中确认并测量阿秒脉冲宽度要到21世纪。2001年, 阿戈斯蒂尼等人^[1]首先利用40 fs的钛宝石激光轰击氩气体靶产生13~19阶的高次谐波, 又将高次谐波与飞秒激光同时打到另一个气体靶上开展一种称为互相关的实验, 结合瞬态光电子谱技术, 最终测量出高次谐波的阿秒脉冲串中每个脉冲的宽度为250 as。这是人类第一次测量到阿秒脉冲, 也为阿戈斯蒂尼带来了诺贝尔奖。同年, 克劳斯等人^[2]利用钛宝石激光经空心光纤压缩机输出的7 fs脉冲, 在氩气体靶中产生高次谐波并选出光子能量90 eV左右(频率 2.2×10^{16} Hz, 波长约14 nm)的一段光谱, 测量结果显示这是一个大约650 as的脉冲。这是人类第一次测量到孤立阿秒脉冲, 也为克劳斯带来了诺贝尔奖。2004年, 克劳斯小组^[33]又利用5 fs的驱动激光结合阿秒条纹相机方法测量了脉宽为250 as的孤立脉冲, 这种测量方法沿用至今。这几个实验突破了飞秒的界限, 把人们在超短激光脉冲和超快光学研究领域的能力推进到了阿秒量级。

2006年, 意大利超快超强光学国家实验室的Nisoli小组^[34]将脉宽缩短到130 as。2008年, 已经搬到德国的克劳斯小组^[35]使用3.3 fs的驱动激光获得了80 as的孤立脉冲。2012年, 美国中佛罗里达大学常增虎教授研究组^[36]获得了67 as的孤立脉冲, 中心光子能量90 eV, 这至今仍是钛宝石飞秒激光器产生的最短阿秒脉冲。2013年, 中国科学院物理研究所魏志义研究员课题组^[37]使用3.8 fs的驱动脉冲获得了160 as的孤立脉冲, 是国内第一个阿秒脉冲实验结果。在2017年7月由中国科学院物理研究所在西安主办的第六届国际阿秒物理

会议上, 常增虎教授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. 常教授研究组^[38]于 2017 年 8 月发表了论文, 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), 刷新了他自己的世界纪录, 并且第一次将阿秒脉冲的光子能量提高到 100 eV 以上. 两个月后, Wörner 研究组^[39]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^[40,41]. 近几年, 国内也多次报道了小于 100 as 的实验结果^[42-44].

在不断突破最短相干光脉冲极限的过程中(图7), 人们也在除气体原子或分子以外的介质中产生了高次谐波. 例如, 在晶体等固体材料中发现了与气体中类似的谐波辐射, 并逐渐成为研究凝聚态物质中超快电子过程的工具^[45,46]. 在固体或液体表面形成的等离子体中也获得了高次谐波, 有望在不远的将来成为高功率阿秒脉冲光源^[47-50]. 同时, 人们也利用高次谐波和阿秒脉冲开展对原子、分子和凝聚态材料中电子超快运动的研究^[51-56]. 例如, 近年在强场电离领域的一个热点问题是隧穿时间, 讨论电子在隧穿电离过程中所经历的时间^[57-61]. 隧穿过程在量子力学中以定态方程的形式给出了隧穿几率, 但是人们能不能测量这个过程所经历的时间, 乃至确定隧穿过程中精细的时序变化步骤, 至今还未有定论. 随着技术进步和前沿研究的开展, 阿秒光学将为人带来对电子运动、量子物理乃至电磁相互作用更准确更深入的理解, 这恐怕才是这次诺贝尔物理学奖真正的意义所在.

6 未来

如前所述, 阿秒脉冲处于极紫外到软X射线波段, 其光频周期在阿秒量级, 波长在纳米量级. 对于如此高频的光子, 原子分子内的电子或振动能级已经不能满足产生受激辐射形成激光的要求, 而等离子体或加速器中的高能电子作为光放大介质又存在难度高、价格更高的问题. 人们只好另辟蹊径, 通过飞秒激光场中的电离过程为获得如此高能量的相干光子找到了一条相对简便的途径. 在这个过程中, 阈上电离

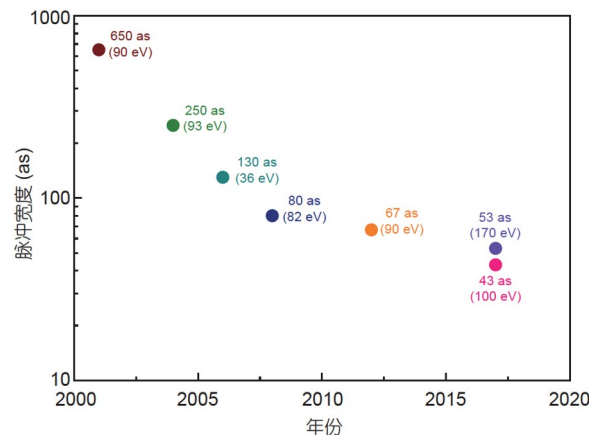


图7 (网络版彩色) 不断突破最短相干光脉冲极限的过程. 括号中数值为阿秒脉冲的中心光子能量^[41]

Figure 7 (Color online) The process of pushing the limit of the shortest coherent light pulse. Numbers in the brackets are the central photon energies^[41]

产生的电子成为将多个飞秒光子能量转换成一个阿秒光子的媒介, 最终把超快光学带入了阿秒尺度. 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 左右, 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. 涉及阿秒脉冲产生和应用的阿秒光学也已经成为物理学研究中最前沿领域之一. 有趣的是, 阿秒脉冲来源于电子在激光场中的运动, 而最终又成为人们研究电子动力学的工具; 这是因为电子运动实在太快了, 由其他运动或过程产生的光脉冲都不可能跟电子运动时间尺度相当, 最终只能靠电子自己测量自己.

进一步, 当人类探索更短的时间尺度时, 很可能需要通过一个类似的媒介将多个阿秒光子的能量转化成一个飞秒 (fs, 千分之一阿秒) 光子, 这个媒介很可能要在光与原子核或核子 (质子和中子) 或核子之间的相互作用中寻找, 而且其本身动力学过程的时间尺度就应该在飞秒量级. 随着科技前沿的推进, 超快光学也终将跨过飞秒的门槛.

推荐阅读文献

- 1 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
- 2 Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology. *Nature*, 2001, 414: 509–513
- 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 Edgerton H E. Stroboscopic moving pictures. *Electr Eng*, 1931, 50: 327–329
- 5 Edgerton H E, Killian Jr J R. Flash! Seeing the Unseen by Ultra High-speed Photography. Boston: Hale, Cushman & Flint, 1939
- 6 Edgerton H E. Milk Drop Coronet – 1957. MIT Museum, Cambridge MA. HEE-NC-57001. MIT Museum, Edgerton Digital Collections. Accessed: 9 November 2023, <http://edgerton-digital-collections.org>
- 7 Edgerton H E. Bullet Through Apple – 1964. MIT Museum, Cambridge MA. HEE-NC-64002. MIT Museum, Edgerton Digital Collections. Accessed: 9 November 2023, <http://edgerton-digital-collections.org>

- 8 Einstein A. Zur quantentheorie der strahlung. *Phys Z*, 1917, 18: 121
- 9 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: 282–284
- 10 Gordon J P, Zeiger H J, Townes C H. The maser—New type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer. *Phys Rev*, 1955, 99: 1264–1274
- 11 Basov N G, Prokhorov A M. Possible methods of obtaining active molecules for a molecular oscillator. *Sov Phys JETP*, 1956, 1: 184
- 12 Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 1960, 187: 493–494
- 13 Agostini P, DiMauro L F. The physics of attosecond light pulses. *Rep Prog Phys*, 2004, 67: 813–855
- 14 Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Commun*, 1985, 56: 219–221
- 15 Zhao K. Laser, chirped pulse amplification, ultrafast optics, and Nobel Prize in Physics (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2019, 64: 1433–1440 [赵昆. 激光、啁啾脉冲放大、超快光学和诺贝尔奖. 科学通报, 2019, 64: 1433–1440]
- 16 Zewail A H. Laser Femtochemistry. *Science*, 1988, 242: 1645–1653
- 17 Scherer N F, Knee J L, Smith D D, et al. Femtosecond photofragment spectroscopy: The reaction $\text{ICN} \rightarrow \text{CN} + \text{I}$. *J Phys Chem*, 1985, 89: 5141–5143
- 18 Wirth A, Hassan M T, Grguraš I, et al. Synthesized light transients. *Science*, 2011, 334: 195–200
- 19 Einstein A. Über einen die erzeugung und verwandlung des lichtes betreffenden heuristischen gesichtspunkt. *Ann Phys*, 1905, 17: 132
- 20 Damon E K, Tomlinson R G. Observation of ionization of gases by a ruby laser. *Appl Opt*, 1963, 2: 546
- 21 Meyerand R G, Haught A F. Gas breakdown at optical frequencies. *Phys Rev Lett*, 1963, 11: 401–403
- 22 Keldysh L V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov Phys JETP*, 1965, 20: 1307 [Zh Eksp Teor Fiz, 1964, 47: 1945]
- 23 Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys Rev Lett*, 1979, 42: 1127–1130
- 24 Augst S, Strickland D, Meyerhofer D D, et al. Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field. *Phys Rev Lett*, 1989, 63: 2212–2215
- 25 Paulus G G, Nicklich W, Xu H, et al. Plateau in above threshold ionization spectra. *Phys Rev Lett*, 1994, 72: 2851–2854
- 26 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
- 27 Kuchiev M Y. Atomic antenna. *JETP Lett*, 1987, 45: 404 [Pis'ma Zh Eksp Teor Fiz, 1987, 45: 319]
- 28 Schafer K J, Yang B, DiMauro L F, et al. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys Rev Lett*, 1993, 70: 1599–1602
- 29 Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1997
- 30 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
- 31 Corkum P B, Burnett N H, Ivanov M Y. Subfemtosecond pulses. *Opt Lett*, 1994, 19: 1870
- 32 Chini M, Zhao K, Chang Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nat Photon*, 2014, 8: 178–186
- 33 Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder. *Nature*, 2004, 427: 817–821
- 34 Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 2006, 314: 443–446
- 35 Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 2008, 320: 1614–1617
- 36 Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt Lett*, 2012, 37: 3891
- 37 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
- 38 Li J, Ren X, Yin Y, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge. *Nat Commun*, 2017, 8: 186
- 39 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
- 40 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 [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]
- 41 Wei Z Y, Xu S Y, Jiang Y J, et al. Principle and progress of attosecond pulse generation (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2021, 66: 889–901 [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: 889–901]
- 42 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
- 43 Zhong S, Teng H, Zhu X, et al. Characterizing 86-attosecond isolated pulses based on amplitude gating of high harmonic generation. *Chin Opt Lett*, 2023, 21: 113201
- 44 Wang J, Xiao F, Wang L, et al. Fast phase retrieval for broadband attosecond pulses characterization. *Opt Express*, 2023, 31: 43224
- 45 Ghimire S, Reis D A. High-harmonic generation from solids. *Nat Phys*, 2019, 15: 10–16
- 46 Goulielmakis E, Brabec T. High harmonic generation in condensed matter. *Nat Photonics*, 2022, 16: 411–421

-
- 47 Thaury C, Quéré F. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors: Basic mechanisms. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2010, 43: 213001
- 48 Quéré F, Thaury C, Monot P, et al. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 125004
- 49 Teubner U, Gibbon P. High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 445–479
- 50 Kim Y H, Kim H, Park S C, et al. High-harmonic generation from a flat liquid-sheet plasma mirror. *Nat Commun*, 2023, 14: 2328
- 51 Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion. *Nature*, 2010, 466: 739–743
- 52 Schultze M, Bothschafter E M, Sommer A, et al. Controlling dielectrics with the electric field of light. *Nature*, 2013, 493: 75–78
- 53 Schultze M, Ramasesha K, Pemmaraju C D, et al. Attosecond band-gap dynamics in silicon. *Science*, 2014, 346: 1348–1352
- 54 Ott C, Kaldun A, Argenti L, et al. Reconstruction and control of a time-dependent two-electron wave packet. *Nature*, 2014, 516: 374–378
- 55 Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, et al. Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses. *Science*, 2014, 346: 336–339
- 56 Hu S Q, Meng S. Ultrafast condensed matter physics at attoseconds. *Chin Phys Lett*, 2023, 40: 117801
- 57 Landsman A S, Keller U. Attosecond science and the tunnelling time problem. *Phys Rep*, 2015, 547: 1–24
- 58 Sainadh U S, Xu H, Wang X, et al. Attosecond angular streaking and tunnelling time in atomic hydrogen. *Nature*, 2019, 568: 75–77
- 59 Babushkin I, Galán Á J, de Andrade J R C, et al. All-optical attoclock for imaging tunnelling wavepackets. *Nat Phys*, 2022, 18: 417–422
- 60 Kneller O, Azoury D, Federman Y, et al. A look under the tunnelling barrier via attosecond-gated interferometry. *Nat Photonics*, 2022, 16: 304–310
- 61 Yu M, Liu K, Li M, et al. Full experimental determination of tunneling time with attosecond-scale streaking method. *Light Sci Appl*, 2022, 11: 215

Summary for “阿秒光学简史——2023年度诺贝尔物理学奖背后的故事”

A brief history of attosecond optics—The story behind the Nobel Prize in Physics 2023

Kun Zhao^{1,2}

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

² Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China

E-mail: zhaokun@iphy.ac.cn

The Nobel Prize in Physics 2023 was awarded jointly to Pierre Agostini, Ferenc Krausz, and Anne L’Huillier “for experimental methods that generate attosecond pulses of light for the study of electron dynamics in matter”. An attosecond is to one second as one second is to the age of the universe, as explained by the Nobel Prize website. “L’Huillier discovered a new effect from laser light’s interaction with atoms in a gas. Agostini and Krausz demonstrated that this effect can be used to create shorter pulses of light than were previously possible.” stated by the Royal Swedish Academy of Sciences. In the advancement of ultrafast optics, to acquire details of 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. Attosecond is the time scale of electron motions in atoms and molecules, so attosecond pulses are the very tool to study electron dynamics.

In the history of high-speed photography, which may be regarded as the predecessor of modern ultrafast optics, the stroboscopic photography by Harold Eugene Edgerton is a very nice example of studying fast-moving objects such as bullets. However, this technique only works for macroscopic objects. To study microscopic objects such as atoms or electrons, even shorter strobe light is necessary.

Laser’s invention in 1960 provided a new direction to generate shorter light flashes. After a series of technical breakthroughs, laser pulse duration reached the “femtosecond barrier” around the end of the twentieth century. However, even femtosecond pulses are not short enough to study electron dynamics. During the same time, ionization of atoms and molecules under the influence of laser fields, which carries certain similarity with the photoelectric effect explained by Einstein in 1905, has been studied intensively and it was found that the ionized electrons may gain significant energy in the laser field. The above-threshold ionization discovered by Agostini started a long series of studies toward even shorter flashes—Attosecond pulses.

In 1988, L’Huillier found that a new radiation later termed as “high harmonics” when laser interacted with atoms. Then, theoretical work pointed out that the motion of the ionized electrons in the laser field produced such harmonics and it was possible to generate attosecond pulses with this radiation. Eventually, in 2001, Agostini studied the harmonics in the temporal domain and proved experimentally that the harmonics were actually a series of attosecond pulses. In the same year, Krausz successfully separated one pulse out of such a series, and produced the first isolated attosecond pulse ever in the lab. After that, several research groups around the globe observed shorter and shorter pulses in their labs and now the shortest coherent light pulse lasts only 43 attoseconds.

By now, attosecond optical pulses have permitted researchers the capability to resolve electronic dynamics in real time, and different methods to produce high harmonics and attosecond pulses have been investigated. As the source and the foundation, the continual development of ultra-short light pulses is expected to open new avenues in ultrafast studies. In a future maybe not too far from now, even zeptosecond light pulses may become possible.

ultrafast optics, laser, ionization, high harmonic generation, attosecond pulse, electron dynamics

doi: [10.1360/TB-2023-1127](https://doi.org/10.1360/TB-2023-1127)