

从脉冲激光到阿秒光源，从光电效应到阿秒物理——解读2023年度诺贝尔物理学奖*

葛佩佩 李靖 刘运全[†]

(北京大学物理学院 人工微结构和介观物理国家重点实验室 北京 100871)

2023-10-16收到

[†] email: yunquan.liu@pku.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20231201

From ultrashort to attosecond light pulses, from the photoelectric effect to attosecond physics —— Interpretation of the 2023 Nobel Prize in Physics

GE Pei-Pei LI Jing LIU Yun-Quan[†]

(State key Laboratory of Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

摘要 2023年诺贝尔物理学奖授予超快激光科学和阿秒物理领域的三位科学家，以表彰他们在阿秒光脉冲的产生和应用上做出的卓越贡献。阿秒光脉冲的产生，使得人们可以在亚原子尺度上研究电子的超快运动，打开通向“电子世界”的大门。目前，基于阿秒光脉冲发展的阿秒光子/电子谱学已经成为物理、化学、生物等众多领域重要的研究手段。文章将简要介绍阿秒光脉冲的研究背景、产生、测量方法及其在电子超快动力学研究中的应用。

关键词 诺贝尔物理学奖，超快激光科学，阿秒物理，阿秒光脉冲

Abstract The 2023 Nobel Prize in Physics has been awarded to three scientists in the fields of ultrafast laser science and attosecond physics for their outstanding contributions to the generation and application of attosecond light pulses. Their work has made it possible to study the ultrafast electron dynamics inside atoms, opening the door to the world of electrons. Attosecond spectroscopy is now an important research tool in many fields such as physics, chemistry, and biology. In this paper, we will briefly introduce the historical background of the attosecond light pulse, methods for its generation, and its applications in probing ultrafast electron dynamics.

Keywords Nobel Prize in Physics, ultrafast laser science, attosecond physics, attosecond light pulses

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2022YFA1604301)、国家自然科学基金(批准号: 12334013; 92050201; 92250306)资助项目

1 引言

2023年10月，瑞典皇家科学院宣布将本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)三位科学家(图1)，以表彰他们在实验上产生阿秒激光脉冲并将其运用到物质中电子超快动力学的探测上^[1]。阿秒光源的产生和应用使得人们可以在原子尺度上捕捉电子的超快运动，为揭示微观量子世界的基本动力学过程提供了强有力的探测手段，同时它也催生了“阿秒物理”这一全新的研究领域。

时间和空间是描述物质运动和变化的两个关键维度。为了深入理解物质的微观特性和动态，我们必须探索更为细微的时间和空间尺度。物质由原子和分子组成。原子，作为化学反应最基本的单位，是由中心的原子核及其周围的电子构成的。以氢原子为例，在第一玻尔轨道上，电子绕核运动的周期约为150阿秒(attosecond，简记为as， $1\text{ as}=10^{-18}\text{ s}$)。为了更直观地感受电子运动的时间尺度，这里给出其他物质运动的特征时间尺度，如图2所示。在宏观尺度，通过广义相对论等理论结合宇宙学模型，估计的宇宙年龄约为138亿年，相当于 10^{18} s ，人的寿命大约几十年，约为 10^{10} s ；在介观尺度，芯片的运行速度在纳秒量级(nanosecond，简记为ns， $1\text{ ns}=10^{-9}\text{ s}$)；在微观尺度，分子的转动在皮秒量级(picosecond，简记为ps， $1\text{ ps}=10^{-12}\text{ s}$)，而分子的振动则在飞秒量

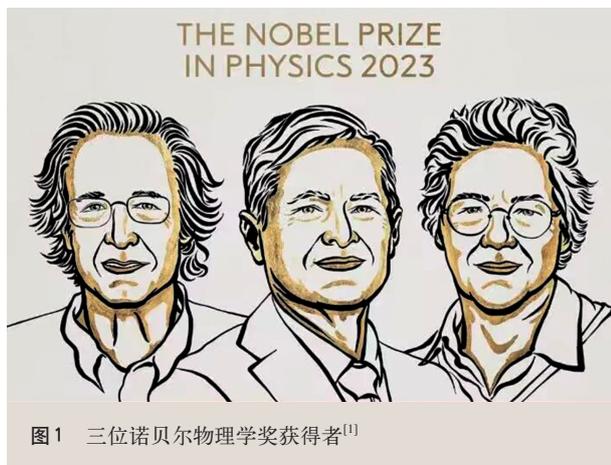


图1 三位诺贝尔物理学奖获得者^[1]

级(femtosecond，简记为fs， $1\text{ fs}=10^{-15}\text{ s}$)。利用玻尔模型，我们知道电子在基态轨道上运动时，轨道能量绝对值 $E_1 \approx 13.6\text{ eV}$ ，因此可以估算电子在氢原子内运动的时间尺度 $t_0 \sim \hbar/E_1 \approx 48 \times 10^{-18}\text{ s}$ ，即48 as。我们还可以估算电子围绕玻尔轨道运动一周需约150 as。可见，阿秒是原子内电子运动的特征时间尺度。为了捕捉电子的超快运动，探测手段必须达到阿秒时间精度。

2 从脉冲激光到阿秒光源

光与物质的相互作用为研究物质和光场特性提供了宝贵的手段。这种相互作用推动了量子物理、原子物理、非线性光学和量子光学等学科的发展，并为多项关键技术奠定了基础。激光技术的诞生将光与物质相互作用研究推向了新的高潮。激光(light amplification by stimulated emission of radiation, LASER)，意思是“受激辐射的光放大”，它是20世纪人类的又一重大技术突破。激光的受激辐射放大原理在1916年由爱因斯坦提出，但直到1960年，世界上第一台红宝石激光器才问世。激光凭借其独特属性，如单色性好、相干性高和亮度高，得到了广泛应用。激光的发明不仅促进了激光技术的发展，还催生了新领域，如非线性光学。从1961年发现二次谐波到20世纪70年代末，是非线性光学研究迅速发展的时期。

在过去的几十年里，科学家们不断追求激光器的高稳定性、高功率、短脉宽、可调谐等目标。随着可调 Q (Q 值表示激光谐振腔的品质因子)、锁模技术的提出，激光的脉宽不断减小，可达皮秒量级，峰值功率逐渐增大，可达 10^9 W 。20世纪80年代，得益于啁啾脉冲放大技术的提出，超短脉冲激光的峰值功率逐步提高，已达到太瓦($1\text{ TW}=10^{12}\text{ W}$)、甚至拍瓦($1\text{ PW}=10^{15}\text{ W}$)量级，其聚焦后的功率密度达到 10^{23} W/cm^2 。啁啾脉冲放大技术的提出者Gérard Mourou以及Donna Strickland获2018年的诺贝尔物理学奖^[2]。

随着超短激光技术的发展，激光科学家不断提升平均功率和峰值功率，还不断缩短超短脉冲

激光的脉冲宽度。目前，飞秒激光脉冲技术已经相对成熟，为超快光学研究开辟了新的途径。它能够捕捉分子的核波包动态，揭示其转动、振动以及化学键的形成和断裂等过程。然而观察电子的超快动态，需要将脉冲进一步缩短到阿秒级别。飞秒激光技术产生的脉宽止步于4 fs量级，在它面前是难以逾越的“飞秒屏障”，这意味着更短脉冲的产生，需要“研究范式的转变”。

强激光与原子的相互作用为阿秒脉冲的产生提供了新的技术路径。得益于超短超强脉冲的发展，聚焦之后的激光强度通常可达 10^{13} — 10^{15} W/cm²，对应的电场强度范围为 10^7 — 10^9 V/cm，这一强度已经可以与原子内部的电场强度相媲美(例如，氢原子基态电子所受到的电场场强约为 5×10^9 V/cm)。在这种极端光场作用下，原子、分子的行为超越了传统理论描述，带来了如隧道电离、多光子电离和高次谐波产生等新奇的非线性现象。这一领域的快速发展促成了超快强场光物理领域的形成，为未来的科学研究开辟了新的方向。

1887年，德国科学家赫兹发现金属表面在光辐射的作用下会发射出电子，这种现象被称为光电效应^[3]。光电效应是典型的单光子电离过程。1905年，爱因斯坦提出了光量子假说并成功地解释了这一现象^[4]，与此同时，他预言当辐射场的强度足够高时，量子体系可能会发生多光子过程。早期，碍于辐射场光子密度较低，实验上很难观测到多光子过程。直到1960年，激光的发明使得辐射场的光子数密度提高了好几个数量级，这为观测多光子过程提供了条件。1963年，E. K. Damon等人使用红宝石激光来电离He、Ar以及中性混合气体，首次在实验上观测到了多光子电离过程^[5]，随后G. S. Voronov等人利用红宝石激光观测到了Xe原子的7光子电离过程^[6]。目前，普遍认为多光子电离发生在激光强度约为 10^{13} W/cm²的条件下，这一过程可以由低阶微扰理论描述。1979年，今年诺贝尔物理学奖得主Agostini组首

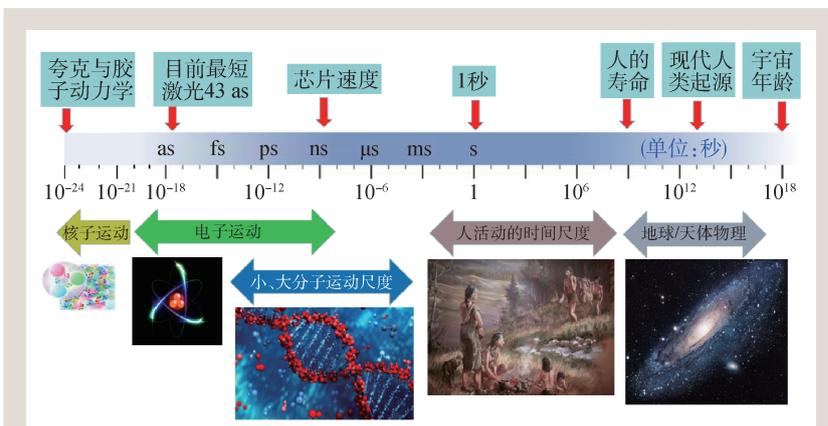


图2 物质运动的特征时间尺度

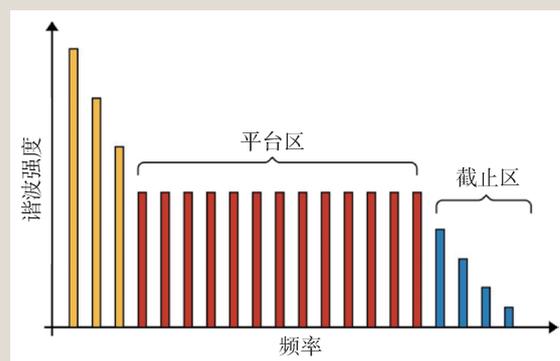


图3 典型的高次谐波光谱^[1]

次在实验上观测到多光子阈上电离现象(above threshold ionization, ATI)^[7]。他们发现电子吸收足够的光子数达到电离能以上之后，还可进一步吸收额外的光子发生连续态间的跃迁。ATI的发现开启了强场物理实验研究的序幕，标志着光与物质相互作用由非线性光学时代迈入了强场物理时代。

随后，L' Huillier组在Kr原子的多光子电离实验中观察到了多电离现象，即Kr原子吸收多个光子发生电离，产生了Kr⁺，Kr²⁺，Kr³⁺和Kr⁴⁺这些不同离子^[8]。随后，他们在Xe原子的实验中同样观察到了类似的多电离现象^[9]。原子多光子多电离现象的发现为后续电离过程中电子—电子关联研究提供了基础。

光与原子的相互作用，不仅涉及到光电子发射过程，还有光子的辐射。1987年，A. McPherson等人利用248 nm的强紫外激光照射稀有气体原子获得了波长小于80 nm的真空极紫外辐射，

首次在实验上观测到高次谐波产生(high-order harmonic generation, HHG)^[10]。假设入射激光场的频率为 ω , 产生的高次谐波光子能量为 $N\omega$, N 为奇数, 代表高次谐波的阶次。典型的高次谐波频谱如图3所示, 类似于阈上电离的电子能谱, 高次谐波的强度先随阶次的增大指数下降, 这个区域被称为微扰区, 随后出现一个较长的平台区, 各阶谐波强度相当, 之后随着阶次的增大, 谐波

强度快速下降, 进入截止区, 最终在某一能量处截止。

1988—1992年间, L' Huillier, K. Shaper, K. C. Kulander等人针对高次谐波过程开展了大量的理论和实验研究, 加深了人们对高次谐波产生机制、效率及相位匹配的理解^[11-16]。时域上, 高次谐波过程可用1993年P. Corkum针对强场电离过程提出的著名“三步”模型来解释^[17]。如图4

所示, 在该模型中, 电子首先在强激光场的作用下发生隧穿, 隧穿之后的电子在外加激光场的作用下加速, 并有可能返回母核, 与核发生复合, 回到基态, 多余的电子能量以高能光子的形式释放。作为强场物理的先驱, Corkum与另外两名诺奖得主L' Huillier以及Krausz共同获得了2022年的沃尔夫物理学奖, 以表彰他们“对超快激光科学和阿秒物理学的开创性贡献”。无论是Kulander等人的解释, 还是“三步”模型, 都是半经典的。直到1994年, M. Lewenstein、L' Huillier和Corkum与其他几位合作者进一步提出了一个完整的量子理论^[18], 证实了Kulander和Corkum的半经典解释。

在揭示了高次谐波的辐射机制之后, 科学家开始研究HHG的时域特征。1996年, L' Huillier等人理论研究发现, 通过筛选电子轨迹, 原则上可以利用HHG制备阿秒脉冲串^[19]。长、短电子轨道概念也是在这项工作中被提出的, 并一直沿用至今。该研究为实验上产生阿秒激光脉冲提供了强有力的理论依据。随后, 他们在实验中利用远场干涉的方法研究了高次谐波的时间相干特性^[20]。

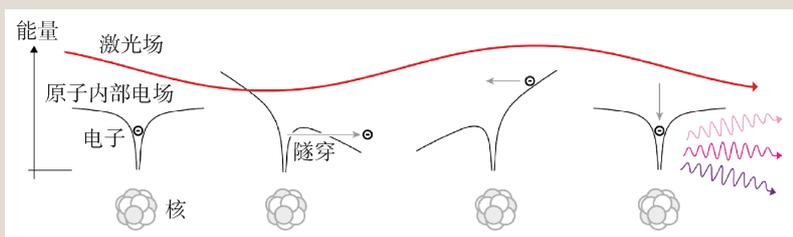


图4 强场电离的“三步”模型^[1]

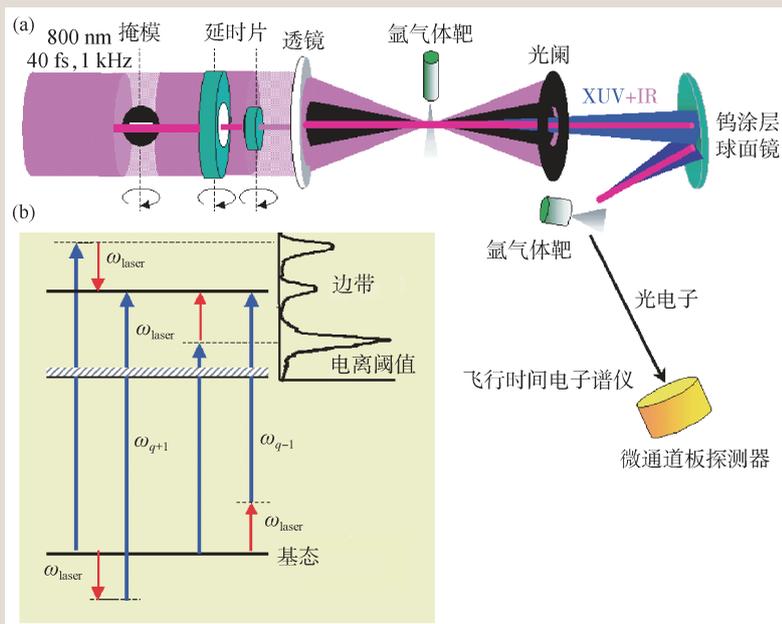


图5 产生阿秒脉冲串的实验方案^[21] (a) 一束钛蓝宝石激光脉冲(800 nm, 40 fs, 1 kHz)经过掩模板被分成外部环形部分和中心部分。这两个部分经过延时片后聚焦到氩(Ar)气体靶上, 其中中心部分电离Ar原子, 并产生极紫外(XUV)谐波, 而环形部分在后续传播过程中被小孔光阑阻挡, 只有红外脉冲(IR)的中心部分及其谐波可以通过。随后, 光束通过一个钨涂层球形反射镜聚焦到氩气体靶上, 使之发生电离。电离产生的光电子通过飞行时间电子谱仪和微通道板来探测; (b) XUV+IR双光子量子跃迁路径。这里 ω_{laser} 表示基频光频率, $\omega_q = q\omega$ 。电子从基态吸收单个XUV光子发生电离, 跃迁到连续态(如蓝色箭头所示)。在IR光场的作用下, 电子将吸收或释放1个IR光子, 发生连续态间跃迁(如红色箭头所示)。对于吸收1个 ω_{q+1} 光子释放1个IR光子, 以及吸收1个 ω_{q-1} 光子再吸收1个IR光子这两条双光子量子跃迁路径而言, 电子将跃迁到相同的能量处, 并发生干涉, 在电子能谱上形成边带结构

伴随着阿秒脉冲产生的物理机制、频谱特征及时域特性的揭示,实验上阿秒脉冲产生和测量的技术条件也越来越成熟。2001年,Agostini利用800 nm光场中Ar原子的HHG首次在实验上产生了阿秒光脉冲串^[21],实验方案如图5所示,他们还利用双光子干涉的阿秒拍频重构(reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transition, RABBITT)实现了对谐波相位以及阿秒脉冲串中脉冲宽度的测量。

除了产生阿秒脉冲串,产生单个孤立的阿秒激光脉冲也同样重要。同年,Krausz团队利用周期量级的激光脉冲驱动高次谐波过程,通过提取高次谐波谱截止区的频谱,首次获得了650 as单脉冲^[22]。值得注意的是,由于单阿秒脉冲制备过程中使用了周期量级光脉冲做驱动光,考虑到光场的相干性以及辐射场的强度,这就对驱动光载波包络相位(carrier-envelop offset phase, CEP,代表激光脉冲峰值和激光包络间的相位差)的稳定性提出了严格的要求,需要用到相位锁定技术。2003年,在与T. W. Hänsch等紧密合作下,Krausz研究团队实现了对周期量级激光脉冲CEP的锁定,解决了单阿秒激光脉冲稳定性的问题,并为其后续的应用扫除了障碍^[23]。CEP锁定技术的核心是光频梳相关技术,这项技术正是2005年诺贝尔物理学奖获得者Hänsch的开创性工作。

在实现了单个阿秒脉冲的稳定产生后,Krausz团队开始寻找其在超快时间分辨测量中的应用。他和Corkum于2002年提出了一种时间分辨测量方法,称为“阿秒条纹相机(attosecond streaking camera)”^[24]。该方法的核心思想是使用孤立的阿秒光脉冲电离原子,并通过一束时间同步的近红外强激光场进行探测,此时电子能量将取决于电离时刻近红外光场的相位。因此,根据电子能量的相位依赖性即可获得阿秒脉冲的脉宽和啁啾信息。Krausz团队于2004年成功在实验上首次实施了阿秒条纹相机方案^[25],通过调节单个阿秒脉冲与近红外光场的时间延迟来测量电子能谱的延时依赖性。如图6所示,电子的能量会随时间延迟发生改变。这种延时依赖性提供了一种

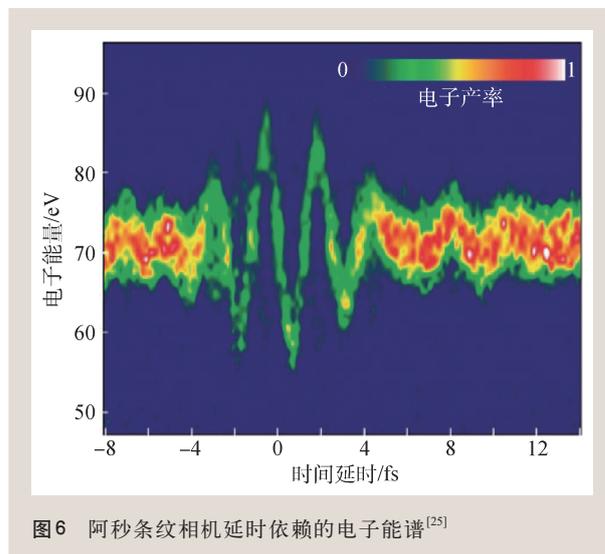


图6 阿秒条纹相机延时依赖的电子能谱^[25]

直接的方法来获取红外激光场的矢势信息,从而达到了激光场波形的测量和再现的目的。

目前,基于气体高次谐波发展的系列阿秒脉冲技术已经成为探索阿秒科学的重要手段。自2001年Krausz团队成功产生650 as的单个脉冲后,研究者们一直致力于如何产生更短脉宽的阿秒脉冲,以提高时间分辨能力。例如,2006年,M. Nisoli等人采用周期量级激光结合偏振门技术,成功制备出脉宽缩短至130 as的孤立脉冲^[26]。2012年,中佛罗里达大学的Z. Chang等人通过调节高次谐波过程中的相位失配,利用锯齿的负色散补偿脉冲的正啁啾,实现对单阿秒脉冲的整形,脉宽可压缩至67 as^[27]。五年后,苏黎世联邦理工H. J. Wörner等人在实验上产生了小于50 as的孤立阿秒脉冲,刷新了最短阿秒脉冲的记录^[28]。

除了追求线偏振的阿秒激光脉冲,科学界也期待能产生高效的椭圆偏振、圆偏振阿秒脉冲。与线偏振激光场不同,在单色圆偏光场的驱动下被电离的电子难以返回母核并与核发生复合,因此,使用单色圆偏光场并不能产生圆偏高次谐波。2015年,美国科罗拉多大学M. Murnane等人探究了双色($\omega+2\omega$)圆偏光场驱动的原子的电离过程,发现在特定的光强比下,反向旋光场中的电子能够返回母核并与核发生再散射^[29, 30]。基于此,他们提出了使用双色反向旋圆偏光场产生圆偏高次谐波的方案,并在实验上成功地产生了高效的圆偏高次谐波^[31]。此外,KM实验室还提出了一种

非共线的圆偏孤立阿秒脉冲产生方案，该方案将两束非共线、同频率的左旋圆偏光和右旋圆偏光聚焦在气体靶上，利用焦点处合成光场的线偏振特性，驱动发生高次谐波过程，然后通过谐波的远场传播，成功制备了孤立的左旋和右旋圆偏阿秒脉冲^[32]。最近，液体和固体中的高次谐波过程也受到了科学家的广泛关注，不同于稀薄气体，液体和固体材料中电子浓度高，谐波效率显著提高^[33-40]。因此，液体、固体高次谐波有望成为产生高强度阿秒光源的重要途径。

3 阿秒光脉冲的应用：从光电效应到阿秒物理

自阿秒激光脉冲诞生以来，它就以其超高的时间、空间分辨率在原子尺度的电子超快动力学探测上发挥了重要作用。目前，基于阿秒激光脉冲的时间分辨测量主要有三种方案：阿秒条纹相机、RABBIT技术，以及阿秒瞬态吸收光谱(attosecond transient absorption)^[41]。前两种方案十分类似，但又略有不同。具体而言，这两种方法均是通过调整阿秒脉冲与近红外光场的时间延迟来获得电子的超快动力学信息。然而前者是结合孤立阿秒脉冲与少周期的近红外强激光场，而RABBIT则是结合阿秒脉冲串与多周期近红外弱光场。瞬态吸收光谱则是一种纯光学方案，它在飞秒超快动力学的研究上得到了广泛应用，并于

2010年被推广至阿秒领域。其具体工作原理是：先用一束近红外的泵浦光照射样品，然后再用一束延时且能量可调的阿秒脉冲来探测样品的透射谱。与前面两种方法不同，瞬态吸收光谱探测的是光子，而非电离产生的电子或离子，因此具有较高的灵敏度。这种方法先后被用于观测价电子波包的超快运动^[41]以及自电离过程的实时成像^[42]。

阿秒脉冲的典型应用是研究电离过程中光电电子发射的延时问题。早期，受限于测量技术，光电效应中“电子的出射是否是瞬时的”一直是个未解之谜。随着阿秒激光脉冲的出现，这一谜团有望得到解开。2007年，Krausz与其合作者U. Heinzmann等人利用阿秒条纹相机技术测量了固体单晶钨的电子发射延时，他们发现4f价带电子的发射相较于导带电子滞后约100 as^[43]。由于金属表面对近红外光场的屏蔽作用，电子只有到达固体表面才会受到红外光场的作用。因此，他们将这一延时归结于电子在固体中的传输效应。紧接着，2010年，Krausz团队利用同样的方法测量了气体Ne原子2p态和2s态电子的发射延时^[44]，实验结果如图7所示，通过对比2p态和2s态电子的相位依赖的电子能谱，他们发现2p态电子的发射滞后于2s态约21 as。2011年，L' Huillier等人利用RABBIT技术测量了Ar原子3s态和3p态的单光子电离延时^[45]，图8(a)和(b)分别展示了3s态和3p态延时分辨的电子能谱，通过对比两个电子态相同阶次的边带结构便可以得到能量依赖的相对电离延时，在此基础上结合理论计算，最终获得了能量依赖的单光子电离延时(图8(c))。这些突破性研究促使了对光电子发射延时的进一步探索，时至今日，光电子发射延时仍是阿秒时间分辨测量的研究热点之一。关于时间延时的测量也逐渐由单光子或少光子过程拓展到了强场多光子电离区^[46-49]。

理论上，利用阿秒条纹相机和RABBIT技术得到的时间延

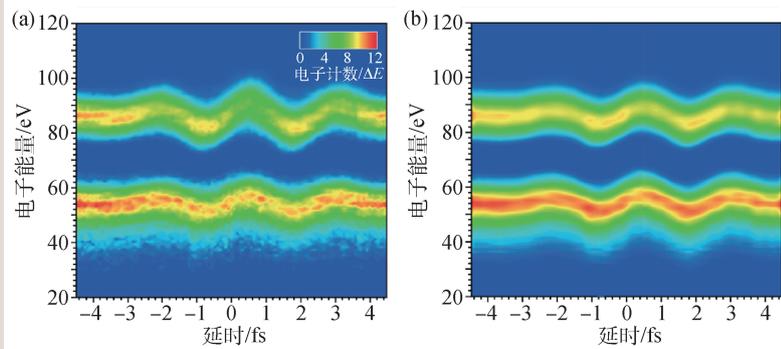


图7 (a) 基于阿秒条纹相机测量得到的2p态和2s态延时依赖的电子能谱。其中，能量较高的谱线对应2p态的电子谱，能量较低的谱线对应2s态的结果；(b) 利用频率分辨光学开关(frequency resolved optical gating, FROG)算法重构的结果^[44]

时主要包括两部分：一部分是吸收单个极紫外 (XUV) 光子电离所需要的时间，它与单光子跃迁矩阵元的相位相关联，对应于 Wigner 延时 τ_w ，即散射相位对电子能量的偏导。通常， τ_w 携带了电离时的原子分子结构和电子的散射信息。例如，通过研究共振电离与非共振电离的时间延迟，可以揭示激发态对光电子发射动力学的影响^[50]。另一部分则是测量过程引入的时间延时 τ_{cc} ，代表连续态电子吸收一个红外光子造成的态间跃迁时间，与长程库仑势有关，因此，通过 τ_{cc} 可间接获得库仑势的信息。特别地，当涉及到分子，角度依赖的 τ_{cc} 还可以反映出分子内部的势能环境。例如，2020 年，德国慕尼黑大学的 M. F. Kling 等人利用阿秒条纹相机技术测量了碘乙烷的时间延时^[51]。当乙烷分子中的一个氢原子被碘原子替换后，电离出的电子主要源自碘原子的巨共振电离通道，那么角度分辨的时间延时也就反映了 τ_{cc} 的信息。进一步地，通过分析 τ_{cc} 的角度依赖性，研究人员提取出碘乙烷的分子势信息。2022 年，华东师范大学的宫晓春教授测量了水团簇的光电子发射延时，通过分析尺寸分辨的水团簇的光电子发射延时，揭示了分子内部环境，尤其是电子—空穴的空间离域对光电子发射延时的影响^[52]。

然而，并非只有使用阿秒脉冲才能实现阿秒时间分辨。2008 年，苏黎世联邦理工的 U. Keller 等人基于少周期圆偏光场中的电离提出了阿秒角条纹技术 (attosecond angular streaking)^[53]。其工作原理是利用圆(椭)偏激光场旋转的光矢量，将不同时刻电离出的电子在动量空间偏转到不同的角度，那么在电子的末态动量分布上，电子的发射角也就反映了电离时刻的信息，这种工作方式非常类似于时钟的指针，因此又被称为“阿秒钟 (attoclock)”技术。为了确定时间参考点(一般取激光电场峰值对应时刻)，阿秒钟一般选用少周期的激光脉冲做驱动光，这也保证了电离时刻和电子发射角一一对应的关系，而时钟的精度则取决于圆偏光场的频率。以 800 nm 少周期圆偏光场为例，激光电场矢量每旋转 1 圈耗时 2.7 fs，对应于电子发射角旋转 360°，那么每度可达到的时间分

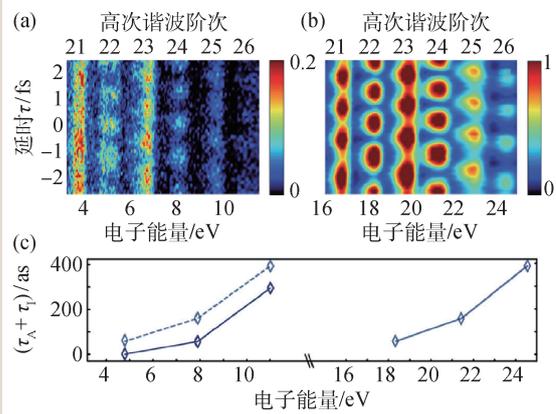


图 8 RABBITT 实验测得 3s 态 (a) 和 3p 态 (b) 态延时分辨的电子能谱；(c) 从各阶边带上提取的电离延时，左侧实线和右侧实线分别代表 3s 态和 3p 态的结果 (左侧虚线图形是把 3p 态移动了 -13.5 eV)，将 3s 态和 3p 态的测量结果相减便可以消除谐波对延时的影响，从而获得 3s 态和 3p 态在不同能量下的相对时间延时^[45]

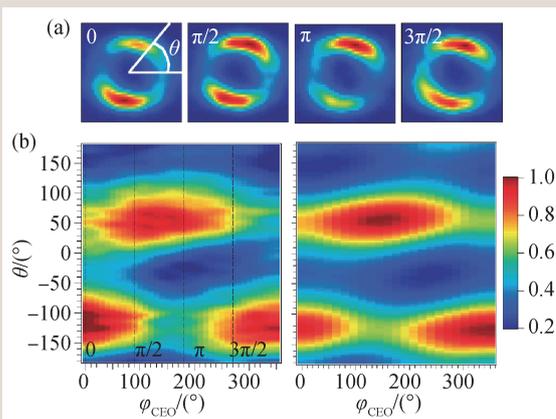


图 9 阿秒钟实验^[53] (a) 实验测量的氮离子在不同 CEP 下的二维动量分布；(b) CEP 依赖的氮离子发射角分布。其中，左图为实验结果，右图为理论计算结果

辨约为 7.5 as。尽管角条纹方案在 2000 年就被提出，但当时的应用焦点是少周期脉冲的 CEP，并没有考虑到角度带来的时间分辨能力。直到 2008 年，阿秒钟技术才将角度与时间分辨结合起来。

自阿秒钟技术提出之后，它就被广泛应用于隧穿延时和隧穿出口坐标等问题的研究。需要注意的是，由于阿秒钟实验中使用了少周期激光脉冲，电子干涉效应被极大地抑制，典型的动量分布如图 9 所示。众所周知，电子干涉携带电动力学的关键信息，例如电子波包的幅度和相位，但提取这些信息在阿秒钟实验中变得困难。为了

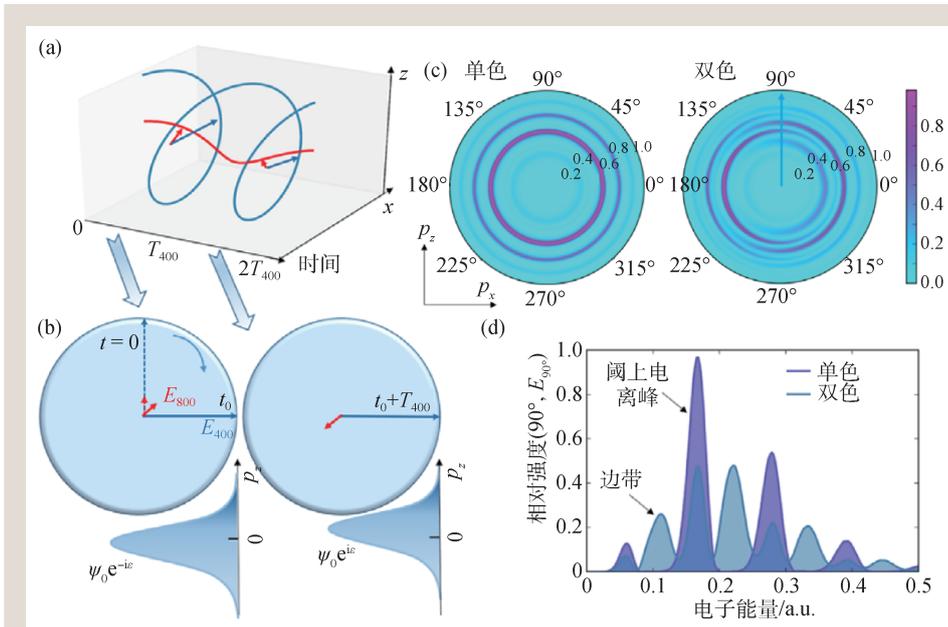


图10 “双指针”阿秒钟工作原理^[54] (a) 双色同向旋圆偏光场, 其中蓝色实线代表400 nm圆偏振激光场, 红色实线表示800 nm圆偏振激光场, 蓝色箭头表示400 nm激光电场矢量, 红色箭头表示800 nm激光电场矢量; (b) “双指针”阿秒钟空间构型。对于电离时刻相差一个400 nm周期的两个波包而言, 它们将受到800 nm光场相反的调控, 因此可以分别表示为 $\psi_0 e^{-i\epsilon}$ 和 $\psi_0 e^{i\epsilon}$, 其中 ϵ 代表800 nm光场对电子波包的调控; (c) 强场近似模型计算的单色和双色圆偏振激光场驱动的电子动量分布; (d) 电子发射角为 90° 时的单色和双色圆偏振光场中电子的能谱

解决这一难题, 我们考虑将阿秒钟技术与某种光电子干涉技术结合, 从而实现对电子相位的时间分辨测量。基于此, 我们课题组提出了“双指针”阿秒钟技术^[54]。该技术利用双色($\omega+2\omega$)同向旋圆偏光场诱导电离, 如图10所示, 其中强倍频光 2ω 作为阿秒钟的分针, 而弱基频光 ω 作为时针。以400 nm+800 nm双色光场为例, 400 nm激光电场矢量旋转一周时, 800 nm只旋转半圈, 相应地, 800 nm的电场矢量将指向相反方向, 这意味着相邻400 nm光场周期电离出来的两个电子波包将受到与800 nm相反的调控。通过分析角度分辨的电子干涉图案, 可提取电子波包角度分辨的幅度和相位信息。进一步地, 利用阿秒钟角度—时间对应关系, 获得了电子波包振幅、相位等随时间变化的信息。随后, 我们将这一技术拓展至双色反向旋光场, 并将其用于多光子区的自旋—轨道延时的测量^[48]。

此外, 我们还提出了一种改进型的阿秒钟技术^[55], 即在基频圆偏光场上叠加一束弱的倍频线偏光场来对阿秒钟进行精确校准。实验上, 通过

测量和分析电子动量谱的最概然发射角, 我们首次在同一个理论框架下将延时隧穿和瞬时隧穿的图像统一起来。最近, 我们将“双指针”阿秒钟技术与新型的“相位之相位 (phase-of-the-phase, POP)”光电子谱学方法相结合^[56], 发现在这种光场构型下, POP的相位直接对应电子的隧穿时刻, 从而明确了“相位”的物理意义。进一步地, 结合POP的对比度谱, 势垒下电子的动力学信息被重构出来, 这些信息包括电子在势垒下运

动所需时间以及电子在势垒下运动所积累的相位, 从而实现了势垒下隧穿动力学的全面刻画。类似地, 通过对飞秒激光脉冲的“时空整形”(改变光场偏振、相位、幅度等), 我们可以在阿秒时间尺度实现对电子动力学的探测和操控。

除了以上这些方法, 科学家们还巧妙地利用强场电离中的再散射过程, 包括高次谐波产生过程以及光电子谱, 实现了对电子动力学的超快探测。这种自探测手段在强场物理的超快探测上发挥了重要作用, 最典型的例子便是利用光电子全息(photoelectron holography)实现对隧穿时刻的精准测量^[57, 58]。

4 展望

本文回顾了阿秒激光脉冲的产生、发展以及应用, 我们可以发现, 科学技术的发展总是呈螺旋式上升。激光技术的进步为强场物理铺路, 而强场物理的研究又反哺于激光技术。阿秒脉冲的产生打开了探索微观电子世界的大门, 是人类在

理解、掌控物质世界的征途中又一里程碑事件。目前,阿秒激光脉冲已是研究亚原子尺度物理规律的金钥匙,并且在控制化学反应、从亚原子尺度研究生命现象等方面有着重要的应用前景。然而,科学的探索永无止境,人们期望能在更精微的时间和空间尺度上揭示物质世界的奥秘。最近,

德国法兰克福大学 R. Dörner 团队在 H_2 单光子双电离实验中发现,从 H_2 分子不同中心出射的电子间存在 247 阿秒(zeptosecond, 简记为 zs, $1 \text{ zs} = 10^{-21} \text{ s}$) 的延时^[59], 该延时实际上对应了光从 H_2 分子中 H 原子的一端穿越到另一端所需要的时间。可以说,阿秒物理方兴未艾, 阿秒物理正在路上。

参考文献

- [1] Scientific Background on the Nobel Prize in Physics 2023. <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/popular-information/>
- [2] <https://www.nobelprize.org/prizes/physcis/2018/summary>
- [3] Hertz H. *Annalen Physik Chem.*, 1887, 267:983
- [4] Einstein A. *Ann. Phys.*, 1905, 322: 132
- [5] Damon E K, Tomlinson R G. *Appl. Opt.*, 1963, 2: 546
- [6] Voronov G S, Delone N B. *JEPT*, 1966, 23: 54
- [7] Agostini P, Fabre F, Mainfray G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1979, 42: 1127
- [8] L' Huillier A, Lompre L A, Mainfray G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1982, 48: 1814
- [9] L' Huillier A, Lompre L A, Mainfray G *et al.* *Phys. Rev. A*, 1983, 27: 2503
- [10] McPherson A, Gibson G, Jara H *et al.* *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987, 4: 595
- [11] Ferray M, L' Huillier A, Li X F *et al.* *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1988, 21: L31
- [12] Li X F, L' Huillier A, Ferray M *et al.* *Phys. Rev. A*, 1989, 39: 5751
- [13] Ferray M, L' Huillier A, Li X F *et al.* *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 1988, 21: L31
- [14] L' Huillier A, Schafer K J, Kulander K C. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, 66: 2200
- [15] L' Huillier A, Balcou P, Candel S *et al.* *Phys. Rev. A*, 1992, 46: 2778
- [16] L' Huillier A, Balcou Ph. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 70: 774
- [17] Corkum P B. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, 71: 1994
- [18] Lewenstein M, Balcou Ph, Ivanov Y M *et al.* *Phys. Rev. A*, 1994, 49: 2117
- [19] Antoine P, L' Huillier A, Lewenstein M. *Phys. Rev. Lett.*, 1996, 77: 1234
- [20] Bellini M, Lyngå C, Tozzi A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 1998, 81: 297
- [21] Paul P M, Toma E S, Breger P *et al.* *Science*, 2001, 292: 1689
- [22] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C *et al.* *Nature (London)*, 2001, 414: 509
- [23] Baltuška A, Udem T, Uiberacker M *et al.* *Nature*, 2003, 421: 611
- [24] Itatani J, Quéré F, Yudin G L *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2002, 88: 173903
- [25] Goulielmakis E, Uiberacker M, Kienberger R *et al.* *Science*, 2004, 305: 1267
- [26] Sansone G, Benedetti E, Calegari F *et al.* *Science*, 2006, 341: 443
- [27] Zhao K, Zhang Q, Chini M *et al.* *Opt. Lett.*, 2012, 37: 18
- [28] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y *et al.* *Opt. Exp.*, 2017, 25: 27506
- [29] Mancuso C A, Hickstein D D, Grychtol P *et al.* *Phys. Rev. A*, 2015, 91: 031402(R)
- [30] Mancuso C A, Hickstein D D, Dorney K M *et al.* *Phys. Rev. A*, 2016, 93: 053406
- [31] Kfir O, Grychtol P, Turgut E *et al.* *Nat. Photonics*, 2015, 9: 99
- [32] Hickstein D D, Dollar F J, Grychtol P *et al.* *Nat. Photon.*, 2015, 9: 743
- [33] Vampa G, McDonald C R, Orlando G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113: 073901
- [34] Luu T T, Jakob Wörner H. *Phys. Rev. B*, 2016, 94: 115164
- [35] Ndabashimiye G, Ghimire S, Wu M *et al.* *Nature*, 2016, 534: 520
- [36] Luu T T, Garg M, Kruchinin S Y *et al.* *Nature*, 2015, 521: 498
- [37] Luu T T, Yin Z, Jain A *et al.* *Nat. Commun.*, 2018, 9: 3723
- [38] Becker L, Annunziata A, Friebe P *et al.* *Liquid Crystals Meet Strong-field Physics: First Attempts Of HHG in Soft Matter. In: Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe (CLEO/Europe 2023) and European Quantum Electronics Conference (EQEC 2023)*
- [39] Kim Y H, Kim H, Park S C *et al.* *Nat. Commun.*, 2023, 14: 2328
- [40] Zeng A W, Bian X B. *Phys. Rev. Lett.*, 2020, 124: 203901
- [41] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A *et al.* *Nature*, 2010, 466: 739
- [42] Wang H, Chini M, Chen S *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2010, 105: 143002
- [43] Cavalieri A L, Müller N *et al.* *Nature*, 2007, 449: 1029
- [44] Schultze M, Fieß M, Karpowicz N *et al.* *Science*, 2010, 328: 1658
- [45] Klünder K, Dahlström J M, Gisselbrecht L M *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2011, 106: 143002
- [46] Willenberg B, Maurer J, Mayer B W *et al.* *Nat. Commun.*, 2019, 10: 5548
- [47] Song X, Shi G, Zhang G *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 121: 103201
- [48] Ge P, Fang Y, Guo Z *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2021, 126: 223001
- [49] Ge P, Han M, Liu M *et al.* *Phys. Rev. A*, 2018, 98: 013409
- [50] Su J, Ni H, Jaroń-Becker A *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2014, 113: 263002
- [51] Biswas S, Förg B, Ortman L *et al.* *Nat. Phys.*, 2020, 16: 778
- [52] Gong X, Heck S, Jelovina D *et al.* *Nature*, 2022, 609: 507
- [53] Eckle P, Smolarski M, Schlup P *et al.* *Nat. Phys.*, 2008, 4: 565
- [54] Han M, Ge P, Shao Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120: 073202
- [55] Han M, Ge P, Fang Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123: 073201
- [56] Han M, Ge P, Wang J *et al.* *Nat. Photon.*, 2021, 15: 765
- [57] Huismans Y, Rouzée A, Gijsbertsen A *et al.* *Science*, 2011, 331: 61
- [58] Porat G, Alon G, Rozen S *et al.* *Nat. Commun.*, 2018, 9: 2805
- [59] Grundmann S, Trabert D, Fehre K *et al.* *Science*, 2020, 370: 6514