

探索亚原子世界的利器

——阿秒光脉冲

周胜鹏 刘爱华

(吉林大学原子与分子物理研究所 130012)

在以化石能源为动力的现代交通工具出现以前,马作为最快的交通工具已经为人类服务了几千年。千百年来,无数人好奇马在奔跑过程中,是四脚腾空,还是始终有一蹄着地。在照相技术出现后,人们就开始考虑用照相技术来解决这一问题。在摄影技术中,一个“快门”时间内可以曝光并记录一个动作,动作发生时间越短,需要记录它的“快门”就相应地要求越短,否则图像就会出现虚影。但早期的照相技术曝光时间长,成像速度慢。直到1878年,改进了快门的照相机得以应用,才由迈布里奇(E. J. Muybridge)拍摄了一组赛马奔跑的照片(见图1)。迈布里奇的照片清晰地表明了,在马匹奔跑中的某一时刻,它的四蹄是全部离地的。因此,提高照相机的快门速度(时间分辨能力),可以让我们对事物的认识提高到一个更高水平。

如今,人类的探测器已经飞出了太阳系,而天

文学家们的观测范围更是达到了数百亿光年。空间的距离,可以通过光的传播进行测量,空间的分辨率则变成了在时间上要求更高的分辨率(更快的快门)。对于时间的分辨率,人们常常会用到以下几个关于时间的单位:皮秒($1 \text{ ps}=10^{-12} \text{ s}$),飞秒($1 \text{ fs}=10^{-15} \text{ s}$)和阿秒($1 \text{ as}=10^{-18} \text{ s}$)。为了理解和感受这几个单位的时间长度,我们看一下光在相应时间单位内可以传播多远距离:1秒内光传播30万千米,可以环绕地球约7.5次,在1 ps时间内,只能传播30 cm的距离;在1 fs时间内,则只能传播 $0.3 \mu\text{m}$,这个距离甚至不到一根头发丝的百分之一;而在1 as时间内,光只能传播0.3 nm,也就是3个紧紧排在一起氢原子的长度(或者说,1 as的时间还不够光绕氢原子的“赤道”跑一圈)。

当人们对世界观察的时间尺度达到了阿秒量级,人们可观察的空间分辨也能够达到原子尺度

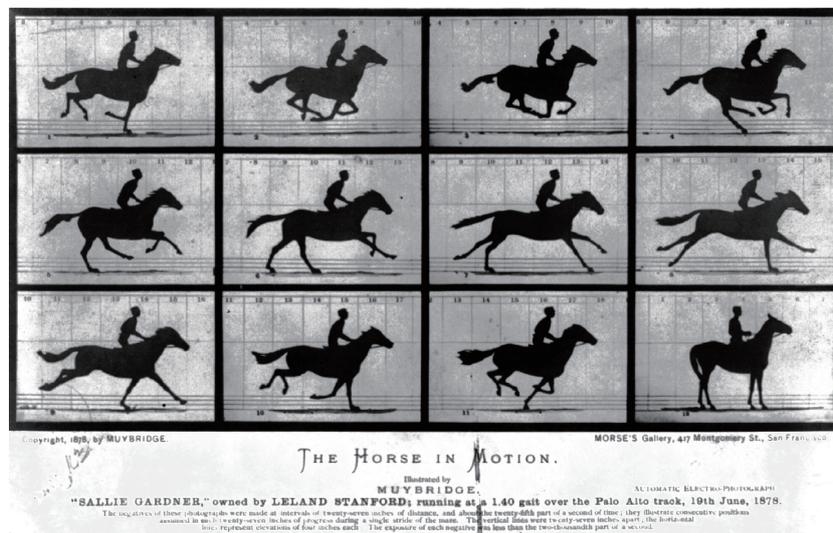


图1 迈布里奇1878年拍摄赛马奔跑时的照片(图片来自:https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/7/73/The_Horse_in_Motion.jpg)

(0.1 nm)和亚原子的尺度了。在这样的时间和空间尺度范围,人们对生物、化学和物理的研究边界也变得不断模糊,因为这些微观现象的根源在于电子的运动。这些微观过程中电子运动的时间尺度可以从几十飞秒到更小几十阿秒,如氢原子中电子绕核一周的时间为152 as。阿秒光脉冲的出现使人们能够结合阿秒量级的超高时间分辨率和原子尺度的超高空间分辨率,实现对原子-亚原子微观世界中的极端超快过程的控制和了解的梦想。

1. 什么是阿秒光脉冲

阿秒光脉冲是一种发光持续时间极短的光脉冲,其脉冲宽度小于1 fs。为了更好地认识阿秒光脉冲,我们需要了解激光的产生和发展过程。激光是一种具有发射方向单一、强度极高且相干性好等特点新型光源。激光的英文名为laser,即是“Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation”的缩写,字面意思为受激辐射对光进行放大。中国物理学家钱学森取其意将其命名为“激光”。20世纪60年代,美国加州休斯实验室的梅曼(T. H. Maiman)研发出了世界上的第一束激光。

激光的理论基础一般认为是由20世纪最伟大的物理学家爱因斯坦在1917年提出的受激辐射理论。在这个理论中,爱因斯坦首次提出了自发辐射和受激辐射等概念。普通光源中自发辐射是光产生的主要来源,受激辐射发生概率极小。后来人们通过不断努力实现以受激辐射发光为主导的光源。这种受激辐射所产生的光,与入射光具有相同的频率、相位、传播方向和偏振方向。

根据发光持续时间的长短,激光一般被分类为连续激光和脉冲激光。连续激光能够在长时间内产生激光但输出的功率较低。脉冲激光工作方式为一个间隔的小时间段内发射的光脉冲,其峰值功率很高。从20世纪激光诞生开始到其后的80年代,脉冲激光的单个脉冲时间可以达到皮秒量级。随着激光技术的不断发展,激光的脉冲宽度也在不断缩短。1981年,贝尔实验室的福克(R.L. Fork)等人采用锁模技术将脉冲激光的脉冲宽度推

进到小于100 fs。2001年,奥地利维也纳技术大学的克劳茨(F. Krausz)研究组在实验上成功地利用气体高次谐波产生了脉宽为650 as的单个光脉冲,使光脉冲宽度达到阿秒量级。

超短的光脉冲有助于提高人们观察微观粒子高速运动的时间分辨率,就像高速相机允许人们记录如爆炸的气球或高速的子弹等更快的事件一样。飞秒激光的出现使人类第一次在原子和分子层面上观察到这一超快运动过程。飞秒激光基于其超高的分辨能力在物理学、生物学、化学控制反应、光通讯、超小型卫星的制造以及现代医学等领域中得到了广泛应用。我们这个世界的物质大都是由分子和原子组成,它们都在不停地飞速运动着,这是微观物质的一个非常重要的基本属性。飞秒激光可以让人们把化学反应过程拍成“电影”并对整个过程进行研究。而化学反应的本质是原子与分子中电子的运动。为了更加深入地观察电子的运动以及对其进行控制,飞秒激光所能够达到的时间分辨尺度以及对应的空间分辨尺度(100 nm)显然是不能满足条件的。而现在实验上所能获得的阿秒光脉冲的脉冲宽度已经能够达到甚至短于电子在原子中的运动周期。阿秒光脉冲这种超短的时间分辨能力已经为基于研究电子运动的阿秒科学打开了大门。

2. 阿秒光脉冲出现之前

在激光产生之后,人们就在追求脉冲激光的更高强度和更短脉冲时间过程中对相关技术进行了不断改进。其中,激光锁模技术(Mode Locking)的发明促进了飞秒激光的诞生,啁啾脉冲放大技术(Chirped-Pulse Amplification, CPA)以及腔外脉冲压缩技术等出现则为产生高强度激光提供了可靠的方案。这些技术的实现为阿秒光脉冲的出现铺平了道路。

激光锁模技术能够让大量高度相干、位相锁定的激光纵模同时振荡,合成一个时间宽度极短的高功率脉冲。早期的锁模激光技术是在固体激光增益介质中实现,产生的激光脉冲宽度小于100 ps。后来,在美国物理学家豪斯(H. A. Haus)被动锁模理论的指导下,碰撞脉冲锁模方式(Colliding-pulse

Mode Locking, CMP)能够让激光脉冲宽度达到 100 fs。20 世纪 80 年代,人们对固体激光介质展开了一系列的研究工作,在运用钛蓝宝石(Ti:Sapphire)激光系统时发现的自锁模现象为超短激光的发展带来了技术革命。自锁模现象是由于非线性介质中的克尔效应所引起,所以也被称为克尔透镜锁模。1999 年,美国麻省理工学院的莫格纳(U. Morgner)等人利用克尔透镜锁模技术不仅让激光脉冲宽度达到了 5.4 fs,还使得脉冲宽度短于两个光学周期。利用飞秒激光的泵浦——探测技术,人们前所未有地观察到了化学反应的中间过程,并成功地控制了化学键的成键与断裂。从事该工作的泽韦尔(A. Zewail)教授也因此获得 1999 年诺贝尔化学奖。

通过锁模技术获得脉冲宽度达到几个飞秒的超短脉冲激光的同时,激光的输出功率也得到了极大的提升,但是随着激光输出率的提高,激光增益介质会因为自聚焦等非线性光学效应而发生损伤,因此脉冲激光的峰值功率受到激光介质破坏阈值的限制。这一限制在长达十年的时间内没有获得大突破,激光器的输出功率密度也一直在 10^{12} W/cm² 附近止步不前。

1985 年,美国罗切斯特大学的穆鲁(G. Mourou)和斯特里克兰(D. Strickland)两人首先提出了激光 CPA 技术,它能极大降低高功率激光放大过程中非线性效应对激光介质的破坏。CPA 技术的基本原理是通过色散技术在放大前分散激光种子脉冲的能量,放大后再利用色散技术逆向将激光脉冲的时间宽度压缩到原来的状态,最终超短脉冲激光的强度得到极大提升。随着 CPA 技术广泛应用,小型化的飞秒 100 TW(1 TW= 10^{12} W)级和 1 PW(1 PW= 10^{15} W)级的超强超短激光系统已经屡见不鲜。CPA 技术已经在目前世界上所有高功率激光器(超过 100 TW)上使用。穆鲁和斯特里克兰为此也获得了 2018 年的诺贝尔物理学奖。

3. 阿秒光脉冲的产生

人们一直在为产生更短的光脉冲努力着,从

100 ps 到 100 fs,再到几个飞秒,直到少周期的飞秒激光出现,短脉冲技术停下了脚步。此时,人们很难让脉冲的包络短于一个光学周期。以 800 nm 波长的激光为例,一个光周期的长度为 2.66 fs,激光的脉冲宽度就很难再短于这个时间了。尽管 2013 年有一个德国的研究小组成功地将飞秒红外激光的光谱展宽至 250~1000 nm,并最终压缩至 415 as,但他们所采用的传统光学脉冲压缩方法很难将激光脉冲的时间宽度进一步缩短。显然,为了获得更短的阿秒光脉冲,人们必须使用更短的载波波长来支持更短的脉冲宽度。

为了产生更短的载波波长,人们需要从光产生的基础理论上得到突破。在阿秒光脉冲出现之前,产生超短脉冲激光的理论基础一直是爱因斯坦的能级跃迁受激辐射。根据受激辐射理论,处于束缚能级上的电子只能在原子核附近运动,所储存的能量有限。一般上下两能级跃迁所发射光子对应的波长都处在可见光附近,可见光一个光学周期一般都在 1 fs 以上,显然难以用来进一步产生更短的阿秒光脉冲。那如果让电子不束缚在原子核附近而是自由放飞会是什么情况呢? 1993 年,加拿大物理学家科克姆(P. Corkum)提出了著名的经典三步模型(three-step model),该模型为短波长光(极紫外至 X 射线)产生奠定了理论基础(见图 2)。经典三步模型将在强激光作用下原子中的电子运动分为三个过程:隧穿电离、激光加速和回核(见图 3)。(1) 隧穿电离:原子内部库仑力的强度接近于一个原子单位(3.55×10^{16} W/cm²),人们通过 CPA 获得的激光强度已达到了 10^{14} 到 10^{15} W/cm²,这一强度已经能够与原子内部的库仑力相比拟了。此时,电子就能够以隧穿电离的形式摆脱库仑束缚。从量子力学的角度来



图 2 提出经典三步模型的科克姆(P. Corkum)教授(中)

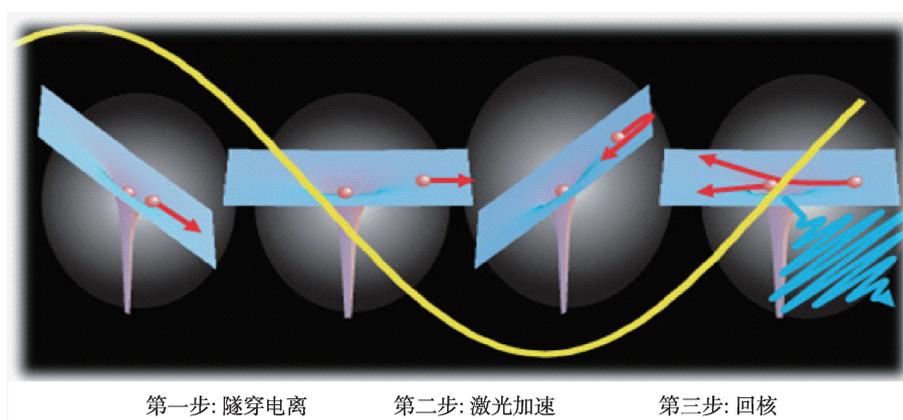


图3 经典三步模型示意图 (图片修改自: <http://www.attoscience.ca/>)

讲,这一个微观事件的发生概率与弱激光作用于原子的多光子电离概率相比得到了极大提高。(2) 激光加速:当电子摆脱原子核的库仑力,其运动几乎完全由激光电场控制,并且电子的运动轨迹可以很方便的采用经典牛顿力学进行描述。(3) 回核:由于激光电场是往复振荡,电子在激光电场的作用下最后会回到原子核附近。在回到原子核的过程中,电子被激光电场加速获得很高的能量。当电子回到原子核,电子的能量以产生高次谐波(High Harmonics Generation)形式释放这部分能量,辐射高能量光子。释放的光子能量为电子在回到原子核过程获得的动能和电子电离能的总和。因此,电子在激光中加速获得的动能越多,光子的能量就越高。

1993年,诺贝尔物理学奖获得者亨施(T. W. Hänsch)提出对高次谐波采用傅里叶合成的方法产生阿秒光脉冲。通常,人们对一束多周期的激光脉冲作用于原子分子产生的高次谐波采用这种方法合成得到的是阿秒光脉冲串,这些脉冲总长度一般在几飞秒到几十飞秒的量级。而想获得阿秒时间尺度的超快时间分辨,必须要从阿秒光脉冲串中选出一个孤立的阿秒光脉冲,即单阿秒光脉冲。产生单阿秒光脉冲的基本办法是在驱动激光大部分周期里抑制高次谐波发射,只在半个光学周期的时间窗口里允许高次谐波发射,这个时间窗口被称为时间门(Gating)。根据该单阿秒光脉冲产生的规律,人们从理论上来探索获得超短的单阿秒光脉冲。

1994年,莱文斯坦(M. Lewenstein)小组提出了

基于量子理论的高次谐波产生的强场近似模型(Strong field approximation, SFA)。在这个理论中,他们假设(i)不考虑激发态的贡献;(ii)忽略基态的衰减;(iii)连续态电子不受原子核的库仑作用。1996年,莱文斯坦小组从理论上证明了单原子模型的计算可以产生阿秒光脉冲。在同一年,赫里斯托夫(I. P. Christov)等人采用单原子三维模型计算利用小于10 fs的激光脉冲产生宽带高效谐波,再通过滤波可以产生100 as左右的X射线阿秒光脉冲。

与此同时,高性能计算机技术的快速发展使得数值求解单原子模型的含时薛定谔方程(Time-dependent Schrödinger Equation, TDSE)成为一种重要的研究方法。求解TDSE方法,采用的近似少,可以较全面包含物理体系的各种信息、各种效应和过程,并能够得到更加准确的结果。但也存在计算量大、物理过程不清晰、不易推广到复杂体系等缺点。针对这些缺点,堪萨斯州立大学的林启东(C. D. Lin)研究小组发展了QRS(Quantitative ReScattering)理论。该理论基于量子散射理论的强场相互作用理论,把在激光电场作用下的返回电子与原子核的相互作用作为一个散射过程,从最终的高次谐波或者光电子分析得到相互作用的信息。此模型的计算结果与TDSE模拟的结果非常相近,计算量却远远小于求解TDSE。

由于单阿秒光脉冲的产生需要有效控制高次谐波的发射时间,而这个发射时间与电子的运动轨迹密切相关,因此,人们一般通过调制激光电场控

制电子的运动进而产生单阿秒光脉冲。通常,人们采用多色联合激光电场来控制电子的运动,这样能够有效控制高次谐波的发射时间。理论研究表明,通过调节振幅比、偏振、波长比、相对延迟、相位等参数优化的多色整形脉冲激光,可以有效控制电子的运动轨迹,进而提高高次谐波产率和缩短阿秒光脉冲的时间宽度。

在实验上,人们根据高次谐波产生对驱动激光各种特性的依赖关系设计了很多技术方案,并且所采用的驱动脉冲激光均为少周期的强飞秒脉冲激光。2008年,古尔利马基斯(E. Goulielmakis)等人利用了高次谐波产生过程对激光强度高度非线性依赖的特性,采用载波包络相位稳定的3.3 fs超短激光脉冲,测量获得80 as的单阿秒光脉冲。这一技术方案被称为少周期激光脉冲泵浦激光方案,但是其在实现过程中对技术要求较高。采用偏振时间门技术可以以相对较低的技术要求实现单阿秒光脉冲产生,目前这一技术已经非常成熟。偏振时间门是利用高次谐波产生效率对泵浦脉冲激光的偏振性质非常敏感这一特性设计。2006年,桑索内(G. Sansone)等利用偏振时间门技术使用5 fs的激光脉冲产生130 as的单阿秒光脉冲。同样基于偏振时间门技术的原理,美国堪萨斯州立大学常增虎(Z. H. Chang)教授等提出了双光学时间门(Double Optical Gating)和广义双光学时间门(Generalized Double Optical Gating)方案,他们可以让产生单阿秒光脉冲的驱动激光脉冲宽度长达28 fs。双色场时间门(Two-color Gating)方案则是利用高次谐波产生对激光电场强度的敏感特性,采用基频激光叠加一个倍频激光电场合成驱动激光电场。中国科学院上海光学精密机械研究所曾志男等人采用双色相干控制方法可以获得148 eV的超宽光谱,理论上这么宽的光谱可以合成小于24 as的超短阿秒光脉冲。此外其他的技术方案也能有效的产生单阿秒光脉冲,如被称为电离时间门的技术方案,这一方案是通过在极短时间内将原子的基态电子电离空,可以采用较长的激光脉冲来产生单阿秒光脉冲。

近年来,阿秒光脉冲的脉冲宽度纪录在不断地

被刷新。2012年,常增虎教授研究小组利用其提出的双光学时间门方案,产生了67 as的单阿秒光脉冲。2017年7月在西安举行的第六届国际阿秒物理会议上,常增虎教授研究小组和瑞士的沃纳(H. J. Wörner)研究小组同时宣布了利用中红外激光采用偏振门技术产生了53 as的单阿秒光脉冲。一个多月后,沃纳研究小组经过优化,突破了50 as大关,产生了43 as的单阿秒光脉冲。这也是目前最快的阿秒光脉冲。目前国内在超短阿秒光脉冲产生的技术上也取得了很好的进展,中国科学院物理研究所魏志义研究小组采用振幅时间门(Amplitude Gating)获得了160 as的阿秒光脉冲。进一步缩短阿秒光脉冲的时间宽度,以及增加阿秒光脉冲的输出能量是科学家们一个长期追求的目标。随着激光技术的不断发展,人们已经可以产生几个甚至几十个毫焦耳的3~5 μm 的中红外驱动光源用于产生阿秒光脉冲。根据高次谐波产生理论,单个光子的最大能量正比于激光光强和激光波长的平方,因此在未来采用更强且波长更长的红外驱动激光更适合产生更短的阿秒光脉冲来刷新纪录。

4. 阿秒光脉冲的应用

阿秒光脉冲具有极端超快的特性,这是一件非常酷的事情,人们采用阿秒光脉冲结合泵浦——探测技术已经可以探测数十阿秒的超快电子动力学过程,并且能够在原子尺度内实时控制电子的运动。阿秒光脉冲的应用是人类正在开拓的一个全新科学领域,它不仅能帮助科研人员分析原子和分子内电子的运动过程、原子核结构等基础物理学问题,也在为材料科学和生命科学等提供全新的研究手段。

目前,人们应用阿秒光脉冲研究原子和分子中的超快电子动力学,关于原子的物理现象主要是原子内电子电离、多电子俄歇衰变、电子激发弛豫和成像等,而关于分子的研究主要是分子的解离过程和控制、分子的振动和转动与超快电子运动的耦合等。例如,德国的克劳茨研究组采用250 as的阿秒光脉冲作用氦原子和氙原子研究电子的激发和隧

穿电离,观察到了氦的二价正离子的产率上升时间为400 as。2017年,加拿大的维伦纽夫(D. M. Villeneuve)研究组采用阿秒脉冲串联合红外激光电场实现了对氦原子的阿秒电子波包的成像(见图4)。

人们对凝聚态物理中的许多超快电子过程也有极大兴趣,这些过程包括表面电子屏蔽效应、热电子、电子空穴动力学等。采用阿秒光脉冲实时检测和控制这些凝聚态中的超快电子过程将有助于改进基于电子的信息技术。目前,阿秒光脉冲在凝聚态物质方面主要是研究表面电子瞬态结构。2007年,克劳茨研究组用阿秒光脉冲对固体表面电子进行检测时发现局域4f态和非局域导带电子发射存在100 as的时间差。此外,阿秒光脉冲结合瞬态吸收谱技术已经从较早的原子分子体系拓展到了凝聚态体系的研究,结合阿秒光脉冲的超快时间分辨和超宽的光谱范围,有可能为凝聚态物质这种复杂体系的电子动力学研究发展新的技术手段,开拓新的方向。阿秒光脉冲的高能X射线与凝聚态物质中紧密束缚的电子相互作用还可以探测特定原子中电子的空间位置以及瞬间的运动状态,这为研究具有化学元素特异性材料中电子的快速过程提供另类方法。这种能力对于像今天使用的手机

和计算机的下一代逻辑和存储芯片这样的发展来说是非常宝贵的。

阿秒光脉冲应用从凝聚态还可以延伸到有机分子和生物分子等更加复杂的体系。在生命科学领域,由于阿秒光脉冲的高能量光子已经可以达到一个能量范围在280 eV到530 eV间的光谱区域,即所谓的“水窗”,在此区域的光子不能被水吸收,但是能够被构成生物分子的碳原子、氮原子等原子强烈吸收,因此,阿秒光脉冲可用于对活体生物样本进行X射线显微,探测生命科学中的量子过程,为复杂的生物分子的建模、理解和控制奠定基础。例如,用阿秒光脉冲对活细胞中生物分子的电子和原子制作慢动作视频,观测光电转换过程中亚原子尺度的电子动力学过程,分析叶绿体进行光合作用效率能达到40%以上的原因,进而改进光电转换材料的性能,让光电转换效率在10%徘徊的太阳能电池板能够更高效的利用太阳能,为实现绿色环保的地球贡献力量。

总之,由于具有极短的时间分辨,以及可以覆盖包括水窗在内的重要光谱区段,阿秒光脉冲已经成为研究亚原子尺度的物理规律最有力的工具,并且在控制化学合成、从亚原子尺度研究生命现象等方面有着重要的应用前景。

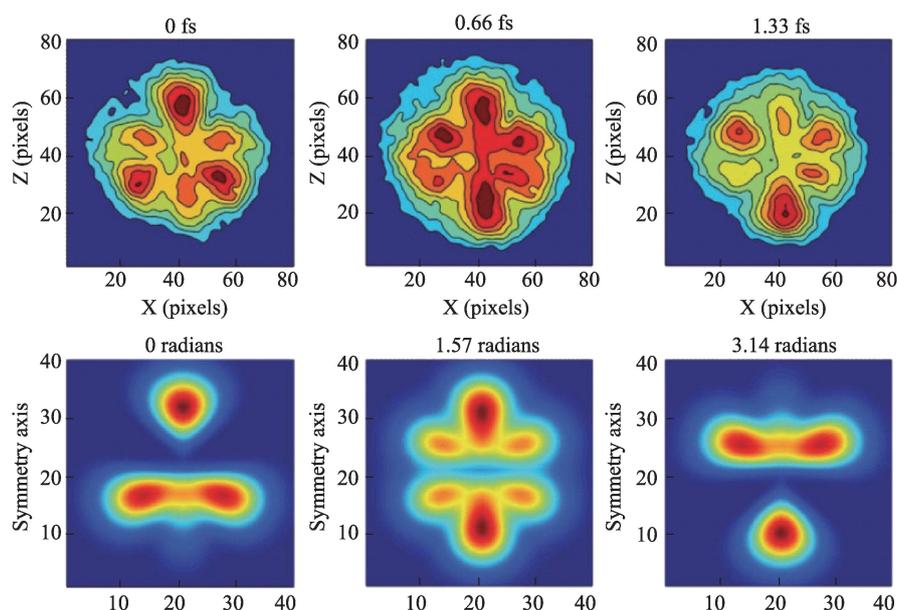


图4 采用阿秒光脉冲串联合红外激光对阿秒电子波包成像的实验结果(上)和理论结果(下)(图片来自:<https://doi.org/10.1126/science.aam8393>)