

# 利用自研阿秒条纹相机测得 159 as 孤立阿秒脉冲

王向林<sup>1</sup>, 徐鹏<sup>1,3</sup>, 李捷<sup>2,3</sup>, 袁浩<sup>1,3</sup>, 白永林<sup>1</sup>, 王屹山<sup>1\*</sup>, 赵卫<sup>1\*\*</sup>

<sup>1</sup>中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 陕西 西安 710119;

<sup>2</sup>中国科学院光电研究院, 北京 100094;

<sup>3</sup>中国科学院大学, 北京 100049

**摘要** 为了精确地测量阿秒脉冲的特性, 自主研制了一套具有高能量分辨率的阿秒条纹相机, 该相机采用了电子飞行距离长达 2 m 的磁瓶式结构电子飞行时间谱仪, 可在提高能量分辨率的同时具有较高的光电子收集效率; 在该设备的光路系统中实现了 NIR 飞秒脉冲与 XUV 阿秒脉冲延时扫描的稳定精度 < 20 as (均方根)。实验中采用双光选通门技术整形飞秒脉冲的光电场, 在氖气池中产生了孤立阿秒脉冲。利用上述阿秒条纹相机测量该脉冲, 获得了阿秒光电子条纹谱, 通过基于单频滤波的相位重构算法得到 159 as 的孤立阿秒脉冲。

**关键词** 超快光学; 超快激光; 阿秒脉冲; 阿秒条纹相机; 阿秒测量; 高次谐波产生

中图分类号 O434.2

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202047.0415002

## Isolated Attosecond Pulse with 159 as Duration Measured by Home Built Attosecond Streaking Camera

Wang Xianglin<sup>1</sup>, Xu Peng<sup>1,3</sup>, Li Jie<sup>2,3</sup>, Yuan Hao<sup>1,3</sup>, Bai Yonglin<sup>1</sup>,  
Wang Yishan<sup>1\*</sup>, Zhao Wei<sup>1\*\*</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an, Shaanxi 710119, China;

<sup>2</sup>Academy of Opto-Electronics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100094, China;

<sup>3</sup>University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract** In order to accurately measure the characteristics of attosecond pulses, we have independently developed a set of attosecond streaking camera with high energy resolution. The device adopts an electronic time-of-flight spectrometer with a magnetic bottle structure and an electronic flight distance of up to 2 m. Based on the above design, the spectrometer has high energy resolution and collection efficiency. The stability accuracy of delayed scanning of NIR femtosecond pulses and XUV attosecond pulses is smaller than 20 as (root-mean-square) in optical system of the device. A double optical gating technology was used to shape the optical electric field of the femtosecond pulses, and an isolated attosecond pulse was generated in the Ne gas cell. The attosecond streaking spectrogram was obtained by the attosecond streaking camera. An isolated 159-as attosecond pulse was achieved through phase retrieval by omega oscillation filtering (PROOF).

**Key words** ultrafast optics; ultrafast lasers; attosecond pulse; attosecond streaking camera; attosecond measurement; high harmonic generation

**OCIS codes** 320.7090; 320.7100; 320.7080; 320.7160

自从 2001 年 Krausz 教授在维也纳技术大学第一次于实验中利用气体高次谐波过程获得 650 as 孤立阿秒脉冲以来<sup>[1]</sup>, 阿秒脉冲已在原子分子物理、

凝聚态物理等领域得到了重要应用。原子内的电子运动和分子中的电荷转移通常在阿秒时间尺度, 因此阿秒脉冲已成为探索与电子运动相关的诸多物理

收稿日期: 2020-03-09; 修回日期: 2020-03-10; 录用日期: 2020-03-23

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFB0405202); 自然科学基金重大项目(61690222); 中国科学院西部青年学者 A 类项目(院内); 中国科学院科研仪器设备研制项目(GJJSTD20190004); 中国科学院国家外国专家局创新团队国际合作伙伴计划

\* E-mail: Yshwang@opt.ac.cn; \*\* E-mail: weiz@opt.ac.cn

过程的重要工具。而且,越来越多的阿秒应用技术需要脉宽更窄、光子能量更高的阿秒脉冲,例如原子内层电子运动的研究,因此近 20 年来阿秒脉冲宽度不断被缩短。Krausz 教授在德国马克斯-普朗克研究所的研究团队不断改进阿秒驱动光源,并在 2004 年采用约 5 fs 的驱动光源得到了约 250 as 的孤立阿秒脉冲<sup>[2]</sup>;四年后,该研究团队又利用 3.8 fs 的驱动光源产生了 80 as 的孤立阿秒脉冲<sup>[3]</sup>。在此期间,意大利 Nisoli 教授于 2006 年改进了驱动光场的选通门技术,得到了 130 as 的孤立阿秒脉冲<sup>[4]</sup>。2012 年,美国中佛罗里达大学的常增虎教授发明了双光选通门(DOG)技术,创造了 67 as 的最短记录<sup>[5]</sup>。近几年已经兴起了将比 800 nm 飞秒脉冲波长更长的长波驱动源用于孤立阿秒脉冲产生的研究热潮,因为它能够激发出更高阶次的高次谐波,得到具有更高光子能量、更窄脉宽的阿秒脉冲。中国科学院上海光学精密机械研究所(以下简称“中科院上海光机所”)的研究团队在理论上研究后发现中红外飞秒激光脉冲通过交流斯塔克效应可以实现多光子共振增强,从而产生高亮度的单色高次谐波辐射,显著提高了长波驱动源产生高次谐波的转化效率<sup>[6]</sup>。2017 年,常增虎教授研究组和瑞士苏黎世联邦理工学院(ETH)的研究者都利用 OPA 技术实现了长波阿秒驱动的孤立阿秒脉冲的产生,他们分别测量到了 53 as 和 43 as 的孤立阿秒脉冲<sup>[7-8]</sup>。中国科学院物理研究所魏志义研究员的团队于 2013 年测量得到了 160 as 的孤立阿秒脉冲<sup>[9]</sup>,中科院上海光机所的研究团队在理论上证实了他们所设计的多喷嘴气体靶可以实现高亮度的高次谐波<sup>[10]</sup>。

本文采用双光选通门技术<sup>[11]</sup>实现了孤立阿秒脉冲的产生,并利用自研磁瓶式阿秒条纹相机获得了阿秒光电子条纹谱,通过反演重构后得到了 159 as 的孤立阿秒脉冲。目前,阿秒脉冲的强度较弱,大多在纳焦至数十纳焦,还难以实现自相关测量,所以现有通用的阿秒脉冲宽度测量方法采用的是阿秒条纹相机<sup>[11,12]</sup>。为了测量阿秒脉冲的特性,笔者所在实验室自研了一套具有高能谱分辨率的阿秒条纹相机。当极紫外(XUV)阿秒脉冲与惰性气体靶作用发射出阿秒光电子时,该光电子会同时受到近红外(NIR)飞秒光电场的调制,通过改变 XUV 和 NIR 之间的延时,可测量得到光电子能谱随延时的变化数据,最终利用反演重构算法就可获得阿秒脉冲的时域和频域特性。

实验采用如图 1 所示的阿秒脉冲产生与测量系

统光路。阿秒驱动光场是载波包络相位(CEP)稳定的钛宝石飞秒放大光,其经空心光纤展宽光谱和啁啾镜压缩脉宽,实验中利用了单脉冲能量为 0.8 mJ、脉宽为 7 fs 的光脉冲。阿秒驱动光场首先被 1:9 的分束片分成两束,一束经过双光选通门对光电场进行整形后用于气体高次谐波的激发,另一束则用作阿秒条纹相机的 NIR 泵浦光。双光选通门包括石英相位延迟片 P1、1/4 波片 P2 和倍频晶体 BBO,其中:P1 的厚度为 270 μm,其光轴与激光偏振方向成 45°夹角;P2 的光轴与激光偏振方向相同;厚度为 140 μm 的 BBO 为 I 类相位匹配。聚焦透镜 L1 的焦距为 150 mm,能够使气体靶上激光的功率密度为 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>。该气体靶为充入氩气的气体池 GC,它是高次谐波产生的介质,气压为 1.0 × 10<sup>4</sup> Pa。在气体靶后插入厚度为 300 nm 的铯薄膜滤波器 F 后,可分离出 XUV 阿秒脉冲,并补偿部分阿秒啁啾。

阿秒条纹相机光路部分包括了上述 XUV 阿秒脉冲产生光路(探测光)和同步的 NIR 飞秒脉冲(泵浦光)。其中,XUV 阿秒脉冲经掠入射的双曲面镜 M1 反射后穿过带孔的反射镜 M2,并聚焦在第二个惰性气体靶上。该气体靶是注入氩气的气体喷嘴 GJ,XUV 阿秒脉冲将使氩气最外层电子电离出光电子,喷嘴内气压为 1.9 × 10<sup>4</sup> Pa。同时,另一路 NIR 飞秒脉冲经过精密控制同步的光延迟线,由透镜 L2 聚焦,再经 M2 反射到氩气靶上。最终,XUV 阿秒脉冲和 NIR 飞秒脉冲在氩气靶上实现空间和时间上的重合。此外,本文采用锁定辅助 532 nm 激光干涉条纹的方法来实现两光束的同步锁定和延时扫描,使得同步稳定精度 < 20 as(均方根)。

阿秒条纹相机的光电子探测部分是本实验自研的一套飞行时间谱仪,采用了磁瓶式结构,能够有效收集更多的光电子。阿秒条纹相机的结构如图 1 所

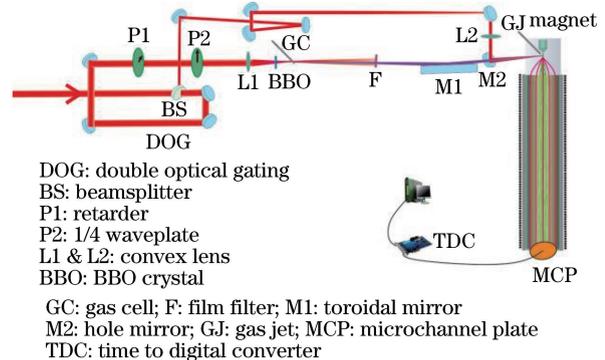


图 1 阿秒脉冲产生与测量光路

Fig. 1 Set-up of attosecond pulse generation and measurement

示,一个锥形的永磁体用于提高锥尖处的磁场强度(磁感应强度为 0.8 T),XUV 阿秒脉冲作用在气体靶上产生光电子,这些光电子将在强磁场的偏转作用下进入飞行管,其飞行距离为 2 m。飞行管上的通电线圈可产生约 8 mT 的弱磁场,使电子运动到达微通道板 MCP。为屏蔽地磁场的影响,在电子飞行管外加上了隔磁合金材料屏蔽层。将飞行时间谱仪设计成压差式结构,光电子产生腔室的真空度较低( $10^{-3}$  Pa),而电子飞行管内的真空度为  $10^{-5}$  Pa。实验中,光电子采集系统主要由 MCP 和时间数字转换器 TDC 组成,其时间分辨率为 150 ps,因此飞行时间谱仪在 100 eV 处的理论光电子能谱分辨率小于 0.1 eV。

采用上述阿秒条纹相机测量本文产生的阿秒脉冲,测得阿秒光电子能谱随延时扫描的谱图,去除背景噪声后获得了如图 2 所示的阿秒条纹谱,扫描步进为 0.142 fs。光电子能谱主要分布在能量值 52 eV 附近,并且随着 NIR 飞秒脉冲与 XUV 阿秒脉冲之间的延时扫描成周期性变化,其时间周期与飞秒光场的光周期一致。最后,利用基于单频滤波的相位重构(PROOF)<sup>[13]</sup>方法对阿秒条纹谱进行反演重构,得到了孤立阿秒脉冲在频域和时域上的脉冲形状与光谱相位,如图 3 所示。根据图 3(a)可得到孤立阿秒脉冲的光谱中心为 74.1 eV,光谱的半峰全宽为 10.7 eV。由图 3(b)可得孤立阿秒脉冲的宽度为 159 as。由相位分布可知该脉冲仍包含有一定的阿秒啁啾,脉冲的时域强度分布未达到高斯型,故可知最终该脉冲还未压缩到变换极限。

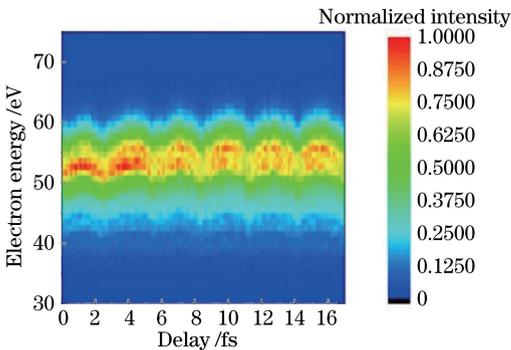


图 2 阿秒脉冲条纹谱图

Fig. 2 Attosecond streaking spectrogram

综上,本文将 CEP 稳定的钛宝石飞秒放大激光作为阿秒驱动光源,建立了阿秒脉冲产生与测量实验系统。采用双光选通门技术整形飞秒脉冲的光电场,实现了孤立阿秒脉冲的选通。本实验室自主研制了用于阿秒脉冲测量的高能谱分辨率阿秒条纹

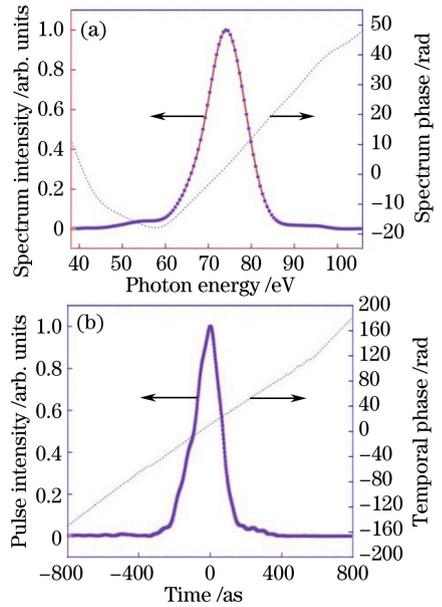


图 3 频域和时域上的阿秒脉冲特性。(a)频域;(b)时域  
Fig. 3 Attosecond pulse characteristics in frequency and time domain. (a) Frequency domain; (b) time domain

相机,其核心部件为电子飞行距离长达 2 m 的磁瓶式飞行时间谱仪,理论上该谱仪在 100 eV 处的光电子能谱分辨率小于 0.1 eV。本文采用锁定辅助 532 nm 激光干涉条纹的方法,使得阿秒条纹相机中 NIR 飞秒脉冲与 XUV 阿秒脉冲延时扫描的稳定精度  $< 20$  as(均方根)。利用这套阿秒条纹相机测量了氩气中产生的阿秒脉冲,根据所获得的阿秒光电子条纹谱,通过反演重构算法得到了 159 as 的孤立阿秒脉冲。进一步优化阿秒脉冲产生过程的参数,有望获得更窄脉宽的孤立阿秒脉冲。

### 参 考 文 献

- [1] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology [J]. Nature, 2001, 414 (6863): 509-513.
- [2] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder [J]. Nature, 2004, 427 (6977): 817-821.
- [3] Goulielmakis E, Schultze M, Hofstetter M, et al. Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320 (5883): 1614-1617.
- [4] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses [J]. Science, 2006, 314 (5798): 443-446.
- [5] Zhao K, Zhang Q, Chini M, et al. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch [J]. Optics Letters, 2012, 37(18): 3891.
- [6] Wang L, Xue J X, Zeng Z N, et al. Generation of

- resonantly enhanced monochromatic high-order harmonics[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(10): 1001003.
- 汪丽, 薛金星, 曾志男, 等. 共振增强单色高次谐波产生[J]. 中国激光, 2019, 46(10): 1001003.
- [7] Li J, Ren X M, Yin Y C, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge [J]. Nature Communications, 2017, 8: 186.
- [8] 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[J]. Optics Express, 2017, 25(22): 27506.
- [9] Zhang L Y, Dai Y, Zheng Y H, et al. Bright high-order harmonic generation via multi-jet arrays [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(10): 1001002.
- 张路遥, 戴晔, 郑颖辉, 等. 采用多喷嘴阵列产生高亮度高次谐波 [J]. 中国激光, 2017, 44(10): 1001002.
- [10] Zhan M J, Ye P, Teng H, et al. Generation and measurement of isolated 160-attosecond XUV laser pulses at 82 eV[J]. Chinese Physics Letters, 2013, 30(9): 093201.
- [11] Chang Z H. Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating[J]. Physical Review A, 2007, 76(5): 051403.
- [12] Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera[J]. Physical Review Letters, 2002, 88(17): 173903.
- [13] Chini M, Gilbertson S, Khan S D, et al. Characterizing ultrabroadband attosecond lasers [J]. Optics Express, 2010, 18(12): 13006.