

时空分辨的飞秒激光光场测量研究进展

李政言*, 门庭, 唐惟启, 胡耀丹, 唐浩程, 闫明东

华中科技大学光学与电子信息学院, 湖北 武汉 430074

摘要 30 多年来,飞秒激光技术取得了巨大发展,并推进着超快光学、强场物理、超分辨成像、精密测量等科学研究领域不断进步,使得人们可以通过实验观测从微米到纳米空间尺度的原子、分子等微观物质,以及这些物质在飞秒到阿秒时间尺度上的演化过程。为了实现这一目的,在技术上对各类飞秒光场振幅和相位的时间和空间三维分布(纵向时间一维、横向空间二维)进行快速甚至单发测量,是十分必要的。本文简述了各类飞秒光场的时空结构测量技术,并讨论了其在泵浦-探测实验中的应用。随着基于飞秒激光的短波次级辐射源的发展,飞秒光场时空结构测量的需求和技术正不断扩展到极紫外和 X 射线等短波波段。

关键词 测量; 飞秒光场; 时空分辨; 泵浦-探测实验; 单发测量

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1201003

1 引言

20 世纪 80 年代,飞秒钛宝石激光器替代了染料激光器^[1-2],为超快光学的发展带来了重大机遇。1985 年发明的脉冲啁啾放大技术奠定了强场飞秒激光的技术基础^[3],这一技术的发明者因此而获得了 2018 年诺贝尔物理奖。经过 30 余年的发展,基于碟片、光纤等增益介质的新型飞秒激光器不断涌现^[4-7],各类技术参数不断提升,激光器的峰值功率最高可达到 10 PW^[8-9],平均功率接近万瓦量级^[10-12],脉冲宽度最短可达到单个周期以下^[13]。基于先进飞秒激光器,各类次级超快光源不断发展;基于飞秒激光高次谐波的阿秒脉冲标志着超快光学进入阿秒时代^[14],且阿秒脉冲激光的波段进入到极紫外和软 X 射线范围^[15];飞秒激光驱动的等离子体尾场可以加速电子使其能量达到 GeV 量级^[16],高能电子的同步辐射(Betatron 辐射)和逆康普顿散射可以产生飞秒脉宽的硬 X 射线,甚至伽马射线^[17-18]。对各类飞秒激光光源和次级光源的光场进行全面表征和测量,可为光源研发提供依据,同时也是利用各类光源开展科学实验的前提。

基于先进的飞秒激光光源,超快光学取得了巨大进展^[19]。在科学研究方面,化学反应的特征时间尺度为飞秒量级,因此利用飞秒激光可以在原子和分子尺度上研究物质形态的演化过程,或者拍摄“电影”^[20-21]。具体来说,飞秒激光光谱不仅为光谱学研究增加了时间分辨能力^[22-23],而且其最宽接近白光的光谱范围在光谱学研究中具有重要应用^[24]。飞秒激光极高的峰值功率能激发复杂的非线性光学过程,可以实现衍射极限下的超分辨成像^[25-27],是激光显微成像领域的重大突破。因此,在超快光学领域,无论是物质进行飞秒尺度演化的时间维度,还是物质特性横向分布的空间维度,都是实验研究需要关注的重要信息。

长期以来,飞秒激光脉冲测量技术主要关注脉冲宽度和时域波形等“纵向”时间结构的测量,出现了估测脉冲宽度的自相关测量^[28]、频率分辨光学开关(FROG)^[29]和光谱相位相干直接电场重构(SPIDER)^[30]等成熟技术。多家企业已将相关技术工程化,生产出各种飞秒激光脉冲测量仪器已销往世界各地的超快光学实验室。为了获得飞秒激光光场的三维时空分布信息,人们通常采用单点测量

收稿日期: 2022-01-10; 修回日期: 2022-02-22; 录用日期: 2022-04-24

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(11875140)、装备预研重点实验室基金(6142A04200212)

通信作者: *zhengyanli@hust.edu.cn

的时间波形与脉冲空间分布相乘的方式。然而,随着超高峰值功率拍瓦激光的出现,人们发现不同空间位置处激光脉冲的时间波形可能具有较大差异,这种特征被称为“脉冲的时空耦合”^[31]。近年来,与各类飞秒激光矢量光场(如径向或角向偏振激光)相关的研究不断涌现^[32],飞秒激光光学涡旋也是当前的研究热点^[33],这些复杂的飞秒激光光场普遍具有复杂的三维时间空间分布。新型飞秒激光光场的复杂三维时空分布对脉冲测量技术提出了新的技术挑战,传统的单纯的时域波形测量已经无法满足复杂光场的测量需求。

本文的首要目标是对近年来不断发展的飞秒激光光场三维时空分布的测量方法进行回顾,并对其在泵浦-探测实验以及短波长高次谐波和阿秒脉冲表征等方面的应用进行展望。全文结构如下:第 2 章对飞秒激光脉冲时间结构测量技术进行简单回顾,因为传统的时域测量技术构成了近年来不断发展的时空分辨测量技术的基础;第 3 章是本文的重点,主要介绍并比较近年来不断涌现的各种时空分辨飞秒激光光场测量技术,并详细介绍部分重要技术的实验原理、装置结构、主要实验结果等;第 4 章对超快激光脉冲时空分辨测量技术进行简要展望,即,超快泵浦-探测实验中对探测激光脉冲的时空结构测量将为超快照相技术提供新思路,在极紫外和软 X 射线波段探索具有激光特性的高次谐波脉冲时空测量技术将有利于人们在阿秒时间尺度和纳米空间维度上研究超快光学过程。

2 早期飞秒激光脉冲时间结构测量技术回顾

飞秒激光脉冲的时间尺度远远小于电子器件带宽所支持的时间灵敏度,因此,一般光电探测器件的响应速度无法满足飞秒激光脉冲时间结构的测量需求。为了解决这一问题,需要利用非线性光学效应,将待测脉冲与参考脉冲(对于自参考情况,参考脉冲就是待测脉冲本身)在时域上相互作用,进而通过数据处理得到待测脉冲的时域结构信息。按照时域上待测脉冲与参考脉冲的相互作用方式,飞秒激光脉冲测量技术大致可以分为基于延时的扫描自相关测量、基于延时的频域干涉测量以及基于时域相位调制的相位参数扫描测量这三类技术。

2.1 基于延时扫描自相关的脉冲时间测量技术

强度自相关是典型的利用时域非线性光学效应进行飞秒激光脉冲时间特性测量的技术,也是目前

脉冲宽度测量采用最广泛的方法之一^[28,34]。图 1(a)是基于和频二次谐波非线性光学效应的强度自相关仪光路结构示意图。入射激光脉冲通过分光镜后获得完全相同的两束脉冲拷贝,这两束脉冲在二次谐波晶体上重新复合得到和频信号。移动平移台改变两束光之间的相对延时 τ ,则探测器接收的和频信号为

$$A^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-\tau)dt, \quad (1)$$

式中: $I(t)$ 和 $I(t-\tau)$ 分别是两光束在对应时刻下的光强。该信号只有在两光束同时到达倍频晶体上时才能达到最强,且自相关信号的时间宽度与待测脉冲宽度之间存在正相关关系。如果假定待测脉冲具有特定脉冲结构(如高斯型),则可估算待测飞秒激光的脉冲宽度。值得注意的是,强度自相关技术无法提供待测飞秒激光脉冲的相位和光场信息,仅能在一定已知条件下对脉冲宽度进行估测。另外,二次谐波强度自相关对于延时具有符号对称性,因此也无法分辨卫星脉冲相对于主脉冲的前后位置。

脉冲的时间结构与光谱相位密切相关^[35],为了精确地获取脉冲时域波形,在测量脉冲强度信息的同时也应获取脉冲的相位信息。为此,可以将自相关仪的和频信号输入至光谱仪并测量不同延时下的和频光谱。这就是 FROG 技术的原理^[29]。FROG 技术采集的原始数据是不同延时下的和频光谱,从该二维数据出发利用相位恢复算法可以重构一维复振幅光场信息,并且可以在数学上证明 FROG 重构涉及的二维相位恢复具有唯一解^[36]。目前已出现了多种用于飞秒激光光场时间波形测量的 FROG 重构算法^[37-40],其中的主成分广义投影算法(PCGPA)以其简易性和稳定性^[39],在飞秒激光脉冲测量中得到了广泛应用。图 1(b)描述了主成分广义投影算法进行脉冲波形重构的主要过程,即:在每一个迭代环节输入预设的脉冲波形(来自上轮迭代的结果或首轮迭代的猜测解),根据预设波形正向计算不同延时下和频信号的光谱复振幅,然后将和频信号光谱的振幅用实验数据替代但保留相位信息,最后根据更新的和频信号复振幅计算得到合理的基频波形,并用于下一轮迭代。随着迭代次数的不断增加,每一轮计算得到的和频光谱不断地向实验数据收敛,此时得到的基频光场波形即反映了待测飞秒激光脉冲的时间结构信息。

除了二阶非线性光学效应以外,三阶非线性光

学效应也被用于进行自相关测量,并衍生出了相应的 FROG 技术。自相关技术中的双光子荧光自相关^[41-42]和三阶自相关^[43-44]技术可以区分二次谐波自相关技术无法区分的预脉冲和后脉冲^[45],甚至可以利用共线干涉自相关^[46-47]在一定程度上确定脉冲相位与时间之间的相关性。FROG 技术中的偏振门 FROG^[48]、自衍射 FROG^[49]、瞬态光栅 FROG^[50]、三次谐波 FROG^[51]等基于三阶非线性光学效应的脉冲测量技术均是针对特殊应用需求提出的,但是三阶非线性效应较二阶和频过程效率更低,因此,一般情况下的脉冲表征还是广泛使用二阶自相关或 FROG 设备。

大型拍瓦激光装置技术近年来取得了长足发展^[52],这也对脉冲测量技术提出了更高要求,主要是其极低的重复频率要求实现飞秒激光脉冲波形的单发测量。单发自相关仪和相应的单发 FROG 技术解决了这一问题^[53]。如图 1(c)所示,飞秒激光脉冲的纵向尺寸一般在数十微米量级,远远小于未聚焦的光斑大小,因此,当待测脉冲两份拷贝以一定角度交叉进入倍频晶体时,脉冲时域信息将映射到横向空间维度,实现单发脉冲时间测量。然而,单发自相关进行脉冲时间测量的前提条件是飞秒激光光场沿横向空间方向均匀分布,这就使得具有复杂时空结构的飞秒激光脉冲波形难以测量。

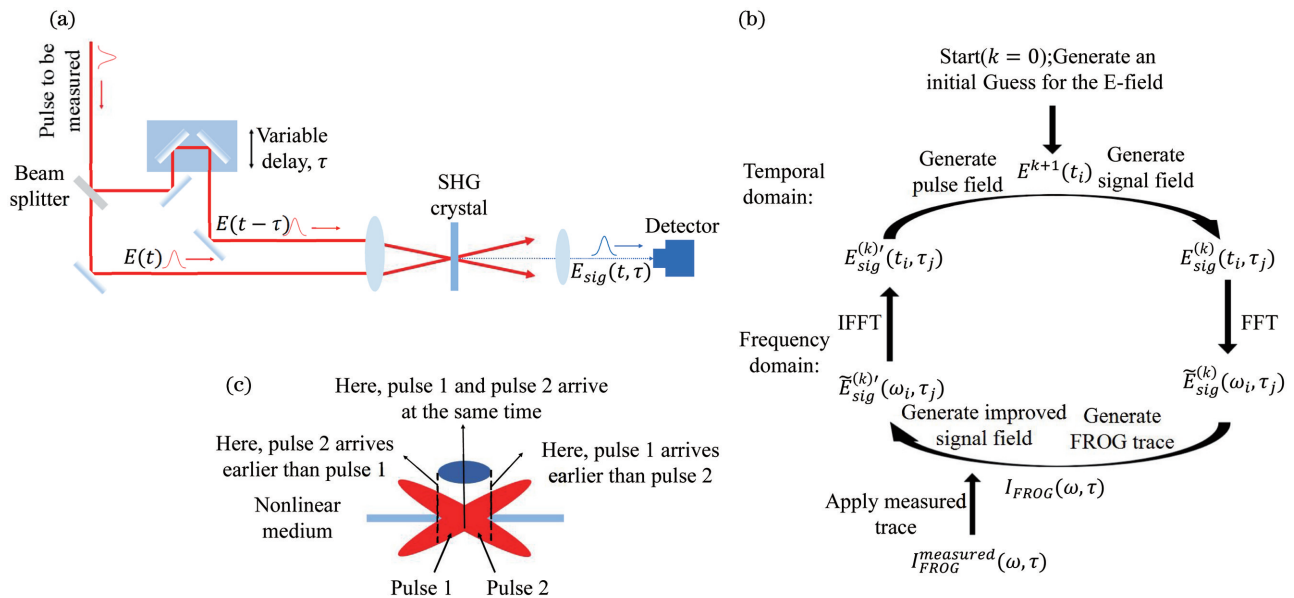


图 1 基于延时扫描自相关的脉冲时间测量的不同技术。(a)二次谐波自相关实验装置图^[34];(b)FROG 算法示意图^[39];
(c)单发自相关原理^[53]

Fig. 1 Different technologies for measuring pulse duration time based on delay scan autocorrelation. (a) Experimental setup for second-order harmonic autocorrelation^[34]; (b) schematic of FROG algorithm^[39]; (c) single shot autocorrelation principle^[53]

飞秒激光脉冲测量的另一个难点在于少周期激光脉冲的时域测量,具体体现在极大的光谱宽度和传输过程中产生的脉冲失真上。随着加工工艺的提高,适用于宽光谱的非线性晶体材料已经可以生长和加工,但是非线性效应的效率在整个波段上会存在明显差别^[54],此外非共线 FROG 中出现的二维时频图的几何展宽也会影响光场的重构效果^[45]。干涉型 FROG (IFROG) 通过将两光束共线入射到非线性晶体上来避免二维时频图上的几何畸变,并采用薄分光镜和非线性晶体来降低透射性元件对脉冲的影响,实现全光谱的非线性响应,并对非线性响应的效率在

整个波段上存在的差异进行校正,从而可以用于少周期甚至单周期脉冲的测量^[55]。值得一提的是,IFROG 将传统的自相关技术与光谱干涉相结合,极大地提高了相位恢复的敏感性、准确性和鲁棒性^[56-57]。

2.2 基于延时的频域光谱干涉测量技术

IFROG 中使用光谱干涉 (SI) 技术来提高相位测量的准确性和敏感性。光谱干涉^[58]是获取飞秒激光光场信息,尤其是获取相位信息的重要手段。光谱干涉的原理^[59]如图 2(a)所示,待测脉冲与参考脉冲以一定的时间延时进入光谱仪,则测得的光谱可表示为

$$S_{SI}(\omega) = S_{ref}(\omega) + S_{unk}(\omega) + 2\sqrt{S_{ref}(\omega)}\sqrt{S_{unk}(\omega)}\cos[\varphi_{unk}(\omega) - \varphi_{ref}(\omega) + \omega T], \quad (2)$$

式中： $S_{ref}(\omega)$ 和 $S_{unk}(\omega)$ 分别是参考光和待测光的光谱； $\varphi_{ref}(\omega)$ 和 $\varphi_{unk}(\omega)$ 分别是参考光和待测光的光谱相位； T 是两光束之间的延时。式(2)展现出了与延时相关的频域调制。采用简单的傅里叶变换技术^[60]，基于光谱干涉数据即可解析出待测脉冲与参考脉冲各自的光强以及两者之间的相位差信息。这对于重构飞秒激光光场的结构来说至关重要。

光谱干涉依赖于待测脉冲和参考脉冲的干涉，允许两脉冲光强差别在数十倍以上，因此可用于超弱飞秒激光脉冲的表征应用，这一技术被称为“Temporal Analysis by Dispersing a Pair of Light E-fields”，简称为“TADPOLE”^[59]。TADPOLE 首先用标准 FROG 技术精确表征光强较强的参考脉冲，然后将光强较弱的待测脉冲和参考脉冲以一定的延时输入到光谱仪，并测量二者在频域上的干涉谱，根据式(2)以及已知的参考脉冲信息，待测未知脉冲的全部光场信息就可以被简单地计算出来。然而，该方法无法实现“自参考”，这使其应用受到了一定限制。

自参考光谱干涉(SRSI)技术^[61]可以在不借助其他手段表征参考脉冲的情况下实现超短激光脉冲的时域表征，并且该方法还可以进行超短脉冲的单发测量。SRSI 将待测脉冲分为两份拷贝，其中的一路通过三阶非线性效应(如交叉偏振波^[62-63]或自衍射波^[64])进行时域滤波，获得具有更宽光谱和几乎平坦的光谱相位^[65]；同时，这一路作为参考脉冲与另一路待测脉冲共线入射到光谱仪中获得频域干涉谱。在数据处理过程中，SRSI 除了要对频域干涉谱进行分析外，还要根据时域滤波方式构建参考脉冲与被测脉冲之间的定量关系，最终迭代计算出输入激光脉冲振幅和相位的时间分布。

光谱相位相干直接电场重构(SPIDER)是另一种自参考光谱干涉技术^[30]，具有灵敏度高的特点。与 SRSI 需要大量迭代运算的数据处理过程不同，SPIDER 无需迭代计算，且无需硬件移动，具有天然单发测量等优点。如图 2(b)所示，待测脉冲的两份拷贝具有确定的延时，两份拷贝与经过啁啾展宽的待测脉冲发生和频，由于延时和啁啾的作用，两份拷

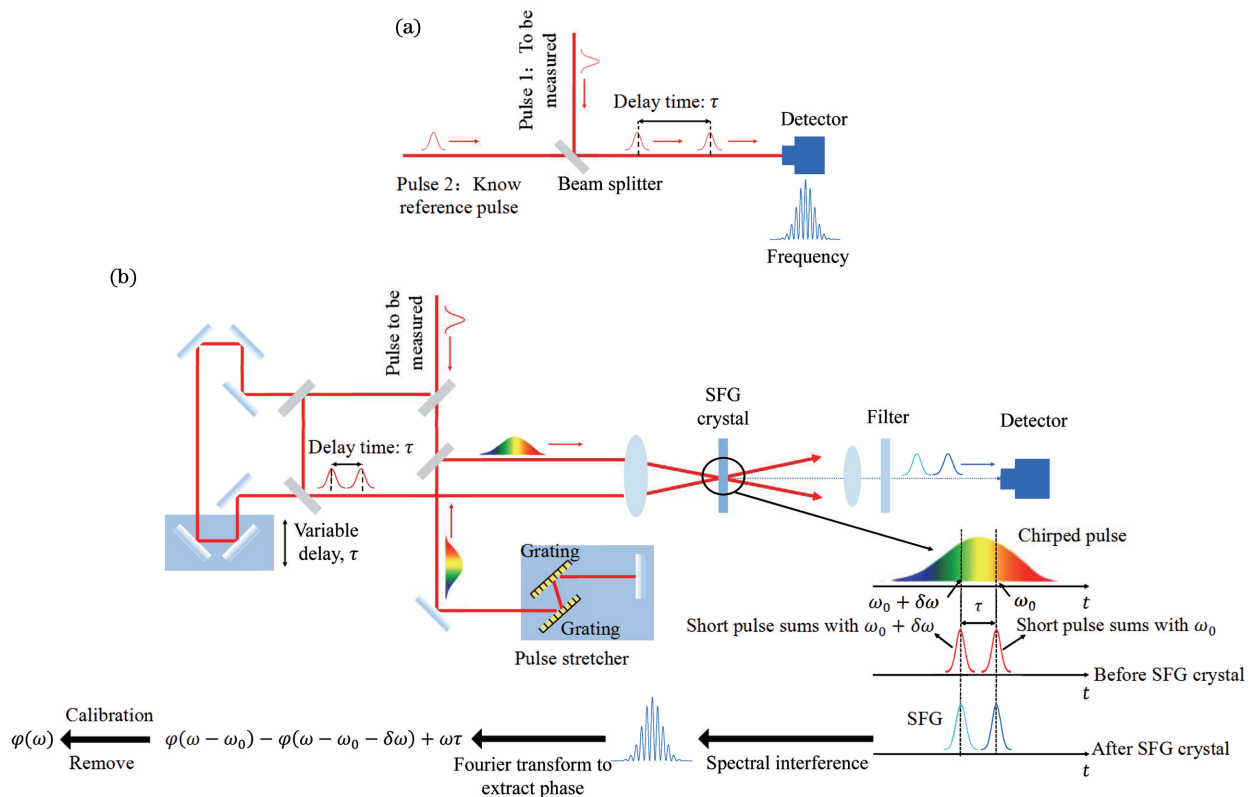


图 2 基于延时的频域光谱干涉测量的不同技术。(a)光谱干涉示意图^[59]；(b)SPIDER 原理图^[34]

Fig. 2 Different techniques of frequency-domain spectral interferometry with delay. (a) Schematic of spectral interference^[59] ; (b) principle of SPIDER^[34]

贝对应的和频信号有一个较小的频率差,并将具有相同频率差的两个光谱组分的相位差体现在频域干涉谱中。对和频脉冲对的频域干涉谱进行分析,通过简单计算即可得到待测脉冲的频域相位,实现光场的测量。近年来,SPIDER 技术在频率偏移定标的准确性^[66]和紫外波段测量^[67]等方面均取得了一定进展。

2.3 基于时域相位调制的相位参数扫描测量技术

脉冲测量的关键是在时域上引入振幅和相位的调制,然后利用光谱干涉直接测量相位调制,或类似于自相关测量,通过非线性光学效应将不同延时条件下的时域调制映射到光谱调制。如果不改变延时条件而是改变一束光的相位,然后在不同相位条件下引入非线性光学效应测量入射脉冲的光谱调制,同样可以实现脉冲光场的测量。这种测量的典型技术包括多光子脉冲内干涉相位扫描(MIIPS)^[68]和色散扫描(D-Scan)^[69-70]。

MIIPS 技术通过图 3(a)所示相位调节装置中的液晶空间光调制器人为引入相位调制量,并在一定范围内进行扫描,记录不同扫描条件下对应的倍频光谱图像,得到 MIIPS 轨迹;然后依据多光子脉

冲内干涉(MII)理论^[71-72],通过获取对应倍频光谱最大值的扫描相位值,确定待测脉冲光谱相位的二阶导数,接着进行积分便可以根据 MIIPS 轨迹求出待测脉冲的相位分布。考虑到待测脉冲的相位分布中存在高阶相位项,通过相位补偿和迭代求解便可最终实现待测脉冲光谱相位的精确求解^[73]。

类似于 MIIPS 技术,D-Scan 技术通过加载不同色散的方式对脉冲进行相位扫描,使得实验操作和相位恢复都大大简化,该技术尤其适用于少周期飞秒激光脉冲的测量。如图 3(b)所示,脉冲在通过非线性压缩之后还可以使用光楔对来精确控制引入脉冲的色散量。D-Scan 技术通过调节这对光楔,使激光脉冲通过不同厚度的光楔引入不同程度的色散,并在每一次调节之后,使引入已知色散的脉冲经历二阶非线性倍频过程,最终通过光谱仪记录此色散条件下的二次谐波光谱,就可以获得不同色散条件下脉冲的 D-Scan 轨迹。由于光楔玻璃材料及其色散特性都是已知的,在数据处理过程中可以对不同色散条件下的二次谐波光谱进行迭代反演,进而得到待测脉冲信息^[74]。如果输入脉冲的空间分布均匀,就可以使用 D-Scan 进行脉冲的单发测量^[75]。

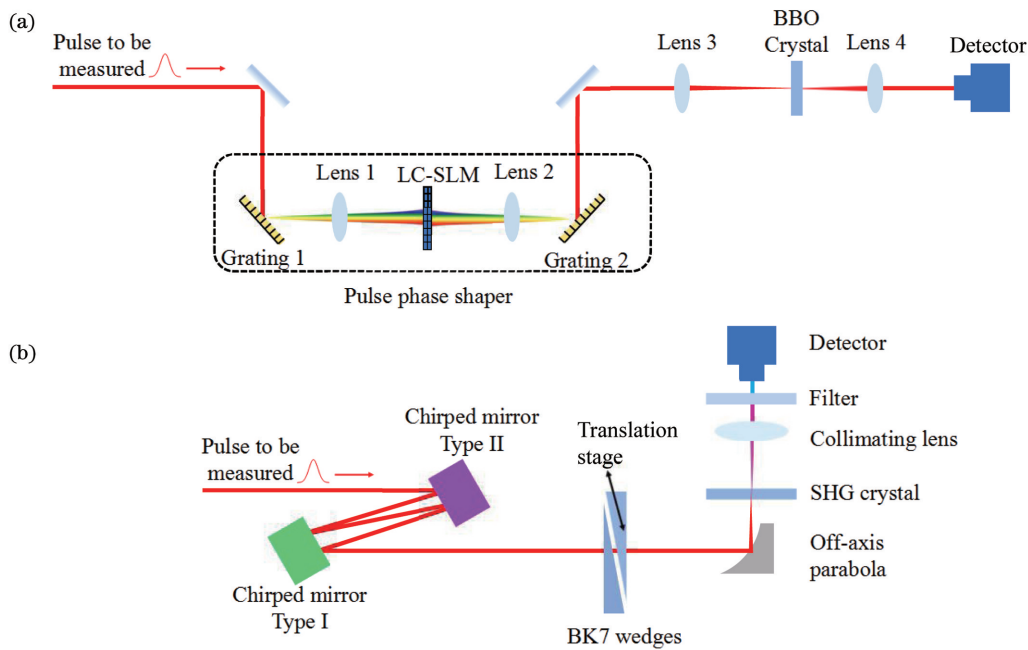


图 3 基于时域相位调制进行相位参数扫描测量的不同技术。(a) MIIPS 原理图^[68]; (b) D-Scan 实验装置示意图^[70]

Fig. 3 Phase parameter scan measurement technologies based on time-domain phase modulation. (a) Principle of MIIPS^[68]; (b) experimental setup for D-Scan^[70]

第 2 章对各类飞秒激光脉冲时间结构测量技术进行了比较和总结。在众多的技术当中,自相关技术尽管只能估算脉冲宽度,无法提供频域相位,甚至测量复杂脉冲时具有较大误差,但自相关

仪结构简单,数据处理便捷,因此自相关技术已成为超快光学领域中一种最主要的脉冲测量方法。但是,当需要获得准确的频域相位和脉冲时域波形信息时,自相关仪便无法满足要求,此时一般采

用 FROG 或 SPIDER 技术进行测量,而且在一定假设的基础上,这两种技术都可以实现单发测量。对于近年来广泛使用的少周期飞秒激光脉冲,其产生过程涉及非线性压缩和色散补偿,其色散补偿元件可直接用于色散扫描,这使得其时域结构特别适合采用 D-Scan 技术进行测量。基于以上 4 种测量技术的设备不仅结构简单,所需光学元件成本较低,而且适用性广,已经形成商品出售。其他测量技术尽管在特定实验中有重要应用,但受制于测量过程的复杂度和仪器成本,其应用范围还不够广。

3 飞秒激光光场时空结构测量

飞秒激光脉冲时域测量技术虽然取得了重要进展,并有大量商品化检测仪器进入市场,但仍难以满足复杂飞秒激光脉冲表征的需求。主要原因在于现有飞秒激光脉冲测量技术要么认为脉冲空间各点具有相同的时域特性,要么对脉冲进行单点探测,缺少了时空三维信息。复杂激光脉冲的时空结构具有时空耦合效应(STC)^[31],不能简单地将其分离成时间分布函数和空间分布函数的乘积。对于一般的超短脉冲激光,圆形孔径导致的衍射^[76]和透镜的聚焦^[77-79]都会使其产生复杂的时空耦合效应,而大型拍瓦峰值功率激光装置结构复杂,其光场自身以及传输都会产生不可忽略的时空耦合,导致焦点处的峰值强度大量损耗^[31]以及脉冲宽度增加等^[80]。因此,对飞秒激光脉冲横向二维空间以及纵向一维时间的振幅和相位信息进行完整表征是非常必要的^[81]。

3.1 基于成像光谱仪的时空分辨飞秒激光脉冲测量

如第 2 章所述,在飞秒激光脉冲时域波形测量过程中,经常需要对倍频信号的光谱进行分析,进而通过复杂的迭代算法将频域信息转化为时域波形,因此,光谱仪是重要的飞秒激光脉冲表征仪器。当人们同时需要纵向时间信息和横向空间信息时,成像式光谱仪以其在狭缝方向上的共轭成像能力^[82],使得同时分辨光谱信息和空间信息成为可能。然而,在垂直于光谱仪入射狭缝方向上的空间分辨较难实现,因此大量基于成像光谱仪的脉冲时空测量技术只能提供一维纵向时间信息或一维横向空间信息。

基于时域测量的 SPIDER 技术,利用成像式光谱仪采集数据获取额外空间信息后,可以实现一维时间信息与一维空间信息的同时测量,这些技术包

括 SEA-SPIDER^[83]和 SEA-F-SPIDER^[84]。以 SEA-F-SPIDER 为例,待测脉冲被分成完全相同的三个子脉冲,其中的两个子脉冲分别通过两个有微小倾角差别的窄带滤光片,之后与第三个子脉冲以一定夹角重合在非线性晶体上,产生两个频率有一定差异的和频脉冲。由于频率和入射角的差异,两束和频光在成像光谱仪中的波长方向以及沿狭缝方向都形成条纹,采用 SPIDER 技术的相位恢复算法即可得到待测脉冲光场的时空分布。SEA-F-SPIDER 技术具有设备结构紧凑、定标精准的优点,可以提供待测脉冲光场的时空结构信息,已被应用于脉冲时空耦合效应的表征^[85]。该技术在中红外飞秒激光脉冲表征方面也实现了重要应用^[85-87]。此外,将空间分辨的 SPIDER 与光谱分辨的空间剪切干涉仪相结合^[88],可以实现一种称为 2D-SPIDER^[89-90]的脉冲时空表征技术,该技术可以实现光场时空结构的单发测量。SEA-F-SPIDER 装置示意图^[91]如图 4(a)所示。

遵循成像式光谱仪的使用原则,时域测量的 SRSI 技术也有相应的时空测量方法,即 SRSI-ETE 技术^[92]。如图 4(b)所示,入射脉冲被分光镜分为两份拷贝,一路通过 BaF₂ 等晶体产生偏振垂直的交叉极化波(光场分布相当于原光场的三次方),实现时间滤波,另一路引入适当的延时并将偏振旋转 90°。两路光合束后以小夹角入射到成像光谱仪中形成频域和空间干涉条纹,然后采用标准 SRSI 迭代算法即可得到待测脉冲光场的时空分布。

基于待测脉冲的自相关或互相关技术也可以通过结合二维成像式光谱仪实现光场时空分辨,将标准 FROG 技术与空间相位恢复相结合形成的 CROAK 技术可以实现光场的时空分辨测量^[93]。如图 4(c)所示,CROAK 测量分为三步:1)利用成像光谱仪测量待测脉冲的近场空间光谱强度,然后利用透镜聚焦得到其远场空间光谱强度并再次利用成像光谱仪进行测量;2)基于近场和远场光谱强度,利用标准相位恢复算法反演出不同光谱成分的一维光场的空间分布;3)利用标准的 FROG 技术测量特定空间位置中不同光谱成分之间的频域相位,进而测量得到二维光场的时空分布。该方法具有良好的通用性,但测量步骤较多,经过适当优化后有望实现单发测量。此外,其他以 FROG 技术为基础的时空表征方法,如成像互相关 FROG (ImXFROG)^[94]和全息共线 FROG (HcFROG)^[95],也在特定条件下实现了应用。

尽管成像光谱仪与多种飞秒激光脉冲时域结构表征方法相结合可以得到光场的时空分布信息(包含一维纵向时间方向和一维横向空间方向的光场分布信息),然而,对于复杂时空耦合的飞秒激光脉冲来说,一维空间分布信息是不够的,需要二维横向空间信息分布。这就需要解决成像光谱仪入射狭缝对空间维度的选择效应,实现待测脉冲光场的时空分辨测量^[96]。解决入射狭缝对脉冲空间位置选择作用的最直观方法是多次扫描成像光谱仪狭缝与脉冲的横向相对位置,得到特定横向位置的一维时间分辨脉冲光场分布结果,然后将多次测量结果拼接,即可形成待测脉冲在垂直狭缝方向的空间分布。

基于时域测量的 TADPOLE 技术(见 2.2 节),如 SEA-TADPOLE 技术,先用光纤耦合参考脉冲某个确定的空间位置,对其光场进行精确表征,然后用另一根安装在二维调整架上的光纤采样、测量待测脉冲的不同空间位置,并用由光栅和透镜组成的光谱仪测量待测采样脉冲与参考脉冲的干涉谱,进而得到待测脉冲的振幅和相位,如图 4(d)所示。为了实现三维时空分辨,测量时对二维平移台进行空间扫描,得到光场的全部信息^[97]。如果将 SEA-TADPOLE 系统中的光栅和透镜元件替换为全光纤器件,基于同样的原理同样可以对待测激光脉冲实现测量,相应的方法被称为 STARFISH 技术^[98]。

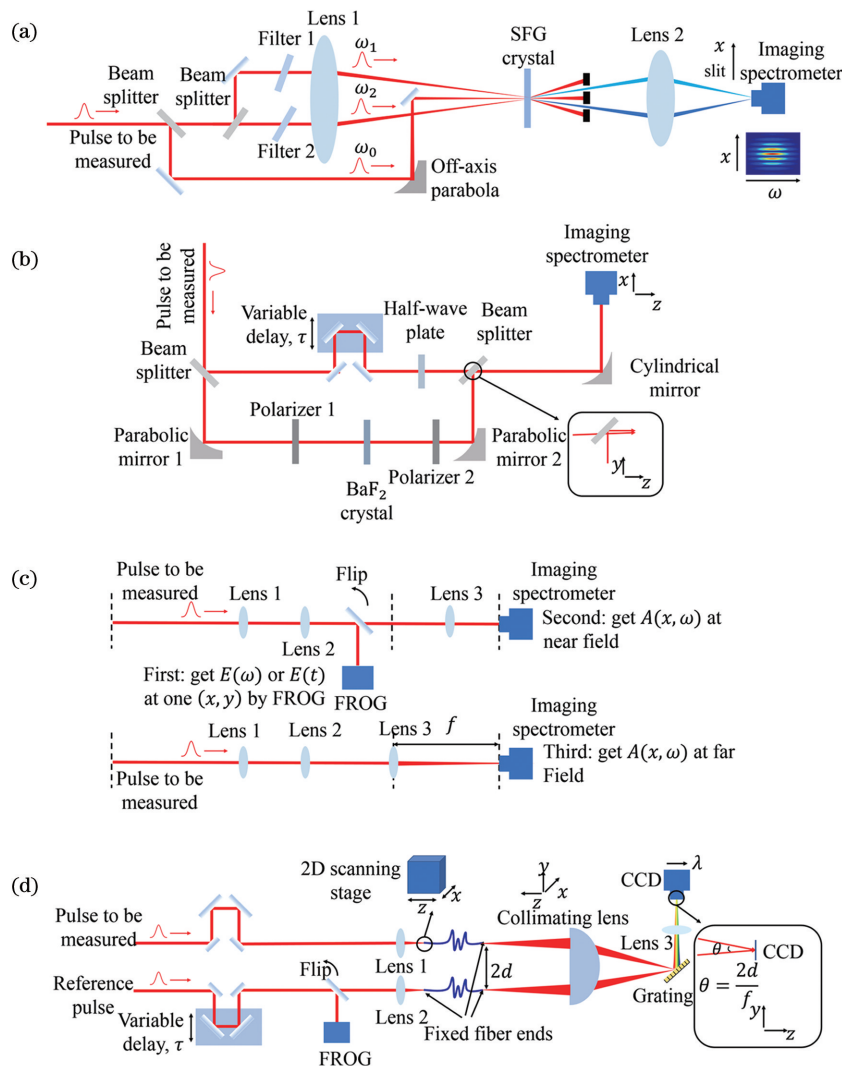


图 4 获取激光光场二维时空信息的不同测量技术。(a)SEA-F-SPIDER 装置示意图^[91]; (b)SRSI-ETE 实验装置示意图^[92]; (c)CROAK 技术原理示意图^[91]; (d)扫描式 SEA-TADPOLE 的实验装置示意图^[97]

Fig. 4 Different technologies for two-dimensional space-time measurement of laser field. (a) Experimental setup for SEA-F-SPIDER^[91]; (b) experimental setup for SRSI-ETE^[92]; (c) principle of CROAK^[91]; (d) experimental setup for scanning SEA-TADPOLE^[97]

采用空间扫描的方式固然可以得到待测脉冲的横向空间二维结构,但大空间的扫描范围和光纤的扫描运动都会导致测量的相位发生波动,同时,分光装置和干涉装置的稳定性和精度也会严重影响最终的测量精度。为了解决上述问题,人们对 SEA-TADPOLE 技术进行改进得到了 RED SEA-TADPOLE 技术^[99]。RED SEA-TADPOLE 使用波长范围与待测脉冲存在差异的参考光,因此扫描过程中引入的相位波动就可以体现在参考光与其干涉条纹的变化中,通过计算相应的相位波动,就可以对待测脉冲的相位进行修正,得到正确的结果。除此之外,人们还尝试使用大量光纤组成二维阵列,如 MUFFIN 技术^[100],来避免光纤运动引入的相位波动,但这些技术比较复杂,而且对测量精度的提高有限,因此应用范围受限。

综上所述,飞秒激光时空测量从原理上来讲存在着两种互相冲突的需求:一方面,电子元件的响应速度无法达到飞秒量级,飞秒激光脉冲时间结构需要通过光谱测量实现;另一方面,光谱测量需要牺牲一个横向空间维度,并需要利用角色散光学元件将光谱信息投影到该空间维度方向进行光谱的获取。因此,传统飞秒激光脉冲时间结构测量技术与成像式光谱仪相结合难以同时得到一维纵向时间维度和二维横向空间维度的光场分布信息,即使通过繁琐的空间扫描方式获得了光场沿垂直于狭缝方向的分布,但仍存在测量效率、系统稳定性、垂直狭缝方向相位分布测量等重要问题,需要找到光谱测量的替代方法。

3.2 基于替代光谱测量方法的时空分辨飞秒激光脉冲测量

在测量飞秒激光脉冲光谱的同时得到各光谱成分光场的二维横向空间分布从原理上来讲是互相矛盾的两方面需求,技术挑战较大,而这一需求恰恰也是多光谱成像和高光谱成像领域亟待解决的问题^[96,101]。因此,光谱成像领域的技术和方法可以为飞秒激光脉冲测量提供新思路。近年来,一些新型飞秒激光脉冲测量技术替代成像光谱仪完成了光谱测量,并取得了较理想的实验结果。

3.2.1 基于多光谱成像方法的飞秒激光脉冲三维时空测量

多光谱飞秒激光脉冲测量方法的工作原理如下:对具有一定带宽的飞秒激光光谱进行采样,选取 10 个左右具有不同波长的光谱通道,测量每个通道的激光光斑和波前横向分布;与此同时,利用传统飞

秒激光脉冲时域测量方法离线表征脉冲的频域相位;假设待测飞秒激光脉冲在频域上的分布较平滑,进行插值并作傅里叶变换,得到飞秒激光的时空分布。多光谱测量方法的优点在于只需处理少量光谱通道,易于实现单发测量,其缺点同样来自较少的光谱通道数量,这使得其难以对具有复杂光谱结构的飞秒激光脉冲(如少周期飞秒激光脉冲)进行表征,且一个探测器同时采集 10 余个通道的光斑图像会导致空间分辨率下降。因此,基于多光谱成像方法的飞秒激光脉冲测量是一种可实现单发测量的准三维时空表征技术。

STRIPED-FISH 技术是一种典型的基于多光谱方法实现待测光场时空结构单发测量的技术^[102]。如图 5(a)所示,STRIPED-FISH 技术涉及待测脉冲和另一个参考脉冲,其中参考脉冲与待测脉冲具有相同的时域结构,但其空间分布和波前结构更加平滑。一般来说,参考脉冲可以从待测脉冲中分光得到,然后通过由针孔组成的空间滤波器得到平滑的波前。待测脉冲和参考脉冲以一个小夹角共同入射二维透射光栅,之后,不同的光谱成分以不同的发散角出射。在二维光栅后方放置一个窄带滤光片,由于不同波长成分的传播方向与窄带滤光片的夹角不同,若干具有特定波长的输入激光的离散光谱成分将被选择出来。这些波长不同的离散光谱成分被大幅面的二维探测器(如照相机)接收,每个波长通道同时包含待测光和参考光,二者形成干涉条纹。

2021 年,美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室利用 STRIPED-FISH 技术对太瓦飞秒激光脉冲进行了时空表征^[103]。如图 5(b)左图所示,参考光的各个波长通道都具有平滑的光斑结构,因此可以近似认为其波前或空间相位是常数值。当待测脉冲和参考脉冲同时输入时,每个波长通道都形成了图 5(b)右图所示的干涉条纹,对各波长通道的干涉条纹进行分析可以得到不同光谱成分激光的波前相位。此时,各光谱成分的频域相位还需要确定,以便将各个光谱成分的光场关联起来。文献[103]中采取的办法是将参考脉冲分出一路输入至传统的飞秒激光脉冲时域测量仪器 GRENOUILLE^[104]中进行 FROG 测量。此时,结合各波长通道内部激光光场的横向空间分布和通道间频域相位信息,可以对光谱结构不是很复杂的飞秒激光脉冲进行插值并作傅里叶变换,进而得到飞秒激光脉冲的光场时空分布。

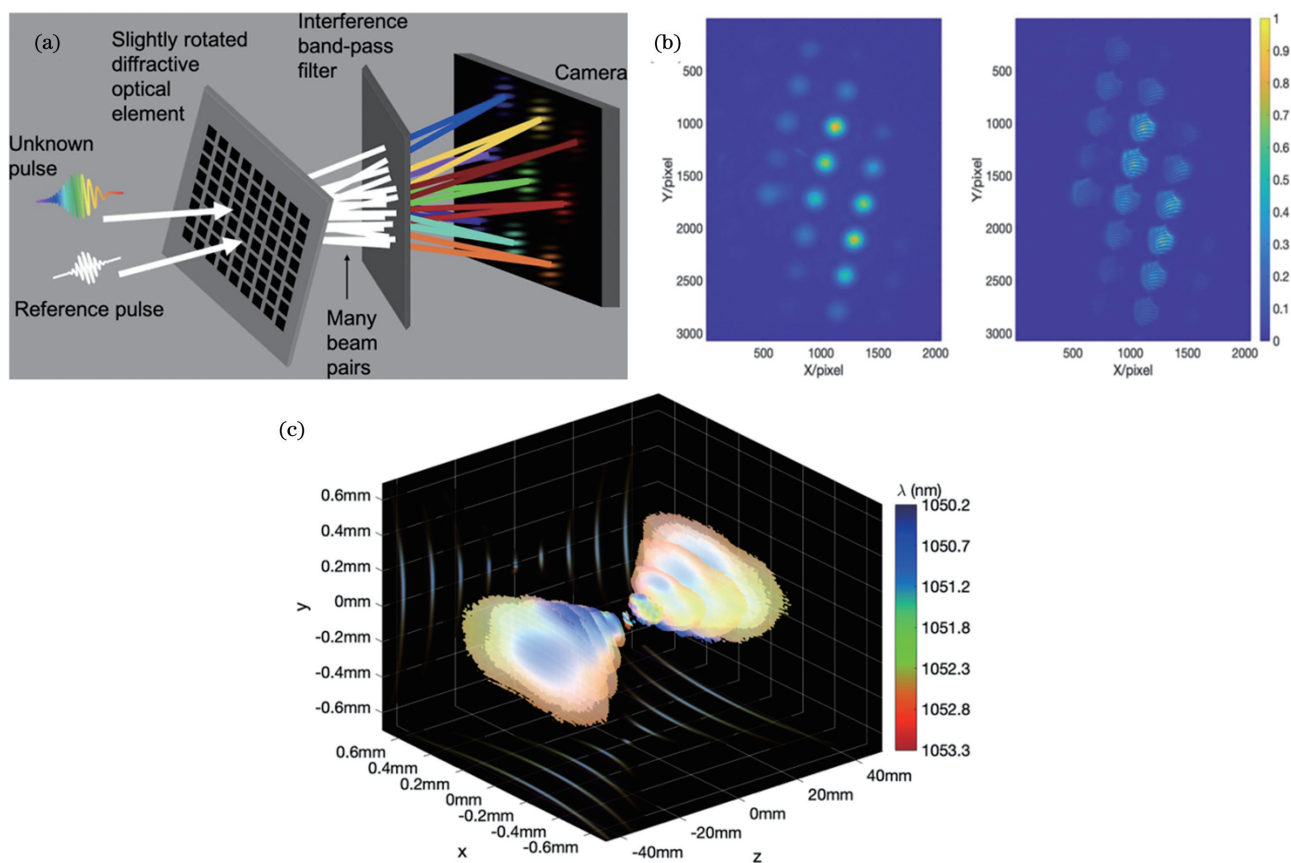


图 5 基于 STRIPED-FISH 技术的太瓦飞秒激光脉冲的时空特性测量^[103]。(a) STRIPED-FISH 技术原理示意图；(b) STRIPED-FISH 测量的太瓦激光脉冲的原始数据，左图是仅有参考光时各波长通道激光光强的空间分布，右图是待测光与参考光同时出现时各波长通道的干涉图；(c) 根据测得的激光脉冲时空分布计算得到的飞秒激光脉冲聚焦传输时时空结构分布的变化

Fig. 5 Measurement of spatiotemporal characteristics of TW femtosecond laser pulses based on STRIPED-FISH technology^[103]. (a) Principle of STRIPED-FISH; (b) raw data of TW laser pulse measured by STRIPED-FISH, where the left image is spatial distribution of the intensity of each wavelength channel for reference laser, and the right image is interference field of each wavelength channel when the measured laser and the reference laser appear at the same time; (c) evolution of spatiotemporal distribution during the focused transmission of TW femtosecond laser pulses calculated with measured spatiotemporal distribution of laser pulses

图 5(c)展示了被测脉冲的时空结构及其主要光谱成分的空间分布。由于已经得到待测脉冲振幅和相位的时空分布，因此可以根据描述光束自由传播的衍射方程计算任意传播位置的光场信息，进而得到待测脉冲的聚焦特性。所以，对于光谱结构不是非常复杂的飞秒激光脉冲来说，STRIPED-FISH 是一种重要的激光光场时空三维分布单发测量手段。利用这一技术，飞秒激光脉冲的时空耦合和超快灯塔效应可以被有效测量^[105]。

传统的 STRIPED-FISH 技术通过引入参考光与待测脉冲干涉来获取波前信息，这使得实验装置和操作较为复杂。中国科学院上海光学精密机械研究所的研究人员发现，在窄带滤光片后方放置衍射光学元件，然后对探测器上各波长通道的衍射光斑

进行数值迭代分析，就可以得到待测脉冲各波长成分的波前^[106]。

除了 STRIPED-FISH 技术，研究人员还通过使用不同的光学元件对飞秒激光脉冲的不同光谱成分进行分光，以及离散化选取多个波长通道，提出了多种多光谱飞秒激光脉冲测量技术。其中的 HAMSTER 是一种典型的测量飞秒激光脉冲三维光场的多光谱技术^[107]，它使用声光色散滤波片 (AOPDF) 选取入射脉冲的若干频率成分，然后利用 Shack-Hartmann 波前传感器测量每一个频率成分的空间相位和振幅分布，最后用标准 FROG 技术测量脉冲的光谱相位，将不同频率成分关联起来就可以得到待测光场的完整信息。使用法布里-珀罗干涉仪选取特定波长成分，结合光栅的分光

特性,也可以达到飞秒激光脉冲多光谱成像的目的,进而实现简单飞秒激光脉冲三维光场的单发测量^[108-110]。

然而,多光谱技术在少周期飞秒激光脉冲^[69,111]等具有复杂光谱结构的飞秒激光脉冲测量中的应用还十分有限。此外,用于选取适当波长的滤波片的制作难度较高,而且滤波片往往仅能选取少数固定频率的信息^[108],或者采样时存在光谱重叠^[109],导致测量误差较大且光谱分辨率较低。尽管多光谱相机可以代替制作难度较大的窄带滤光片^[112],但多光谱相机本身结构复杂且价格昂贵,更关键的是它没有从根本上解决脉冲表征仅依靠少数频率成分采样的难题。

3.2.2 基于高光谱成像方法的飞秒激光脉冲三维时空测量

相比多光谱成像方法,高光谱方法可以将待测光谱划分为 10^2 个甚至更多数量的波长通道,从而能显著提高光谱分辨率,并能准确测量复杂飞秒激光脉冲的光谱。因此,基于高光谱成像方法获取飞秒激光脉冲光谱信息的脉冲测量技术是实现光场(振幅和相位)三维时空分布测量的一种可行方案。

空间分辨傅里叶变换光谱技术(FTS)是一种典

型的高光谱成像技术,它能以较高的光谱分辨率获得不同波长成分光强或振幅的二维空间分布信息^[113],在红外遥感等领域获得了广泛应用。TERMITES 技术将傅里叶变换光谱方法应用到飞秒激光时空结构的测量中,并对傅里叶变换光谱测量过程中使用的迈克耳孙干涉仪引入非对称干涉臂设计,因此可以同时获得不同波长成分的光强和相位信息^[113]。研究人员利用该技术完成了 200 TW 飞秒激光光场的时空分布测量^[114]。

图 6(a)描述了 TERMITES 技术测量飞秒激光脉冲三维时空分布的原理。入射激光脉冲被分光镜分为两束,分别进入迈克耳孙干涉仪的两个臂,两个臂采用非对称设计,反射镜分别为平面反射镜和凸面反射镜。两臂上的反射光再次通过分光镜合束,此时凸面镜反射光具有近似球面波的发散波前,相当于参考光,而平面镜反射光则保持待测脉冲波前结构,两束光在探测平面上干涉形成近似环状干涉条纹,并被 CCD 照相机采集记录。改变迈克耳孙干涉仪两臂之间的光程差或者两个干涉脉冲之间的延时 τ ,可以得到环形条纹沿径向移动的干涉图。对于每一个照相机像素,其信号包括直流项和交流项,利用傅里叶变换选出交流项以后,其信号可以表示为

$$\tilde{S}(x, y, \omega) = \tilde{E}(x, y, \omega) \tilde{E}_R^*(x, y, \omega) = A(x, y, \omega) A_R(x, y, \omega) \cdot \exp\{i[\varphi(x, y, \omega) - \varphi_R(x, y, \omega) - \omega\tau]\}, \quad (3)$$

式中: $\tilde{E}(x, y, \omega)$ 和 $\tilde{E}_R^*(x, y, \omega)$ 分别为待测光和发散参考光在频域上的光场分布; $A(x, y, \omega)$ 和 $A_R(x, y, \omega)$ 分别表示待测光和发散参考光的振幅; $\varphi(x, y, \omega)$ 和 $\varphi_R(x, y, \omega)$ 分别表示待测光和发散参考光的相位分布; ω 为角频率; τ 为待测光和发散参考光之间的延时。在传统的傅里叶变换光谱测量中,待测光与参考光完全相同,因此测量得到的是 $\tilde{E}(x, y, \omega)$ 的模方,即待测光的空间分辨光谱强度。然而,TERMITES 采用的是非对称干涉臂设计,而且可近似为球面波的参考光不仅具有均匀的振幅分布 $A_R(x, y, \omega)$,还具有与待测波前 $\varphi(x, y, \omega)$ 存在确定几何关联的球面波前分布 $\varphi_R(x, y, \omega)$,所以从交流信号 $\tilde{S}(x, y, \omega)$ 出发,利用该复函数的相位信息可以得到待测光与参考光的相位差 $\Delta\varphi(x, y, \omega) = \varphi(x, y, \omega) - \varphi_R(x, y, \omega)$,再结合迭代算法就可以得到待测光振幅 $A(x, y, \omega)$ 和相位 $\varphi(x, y, \omega)$ 的空间分布,即各波长成分的频域光场。

此时再辅以传统的飞秒激光脉冲时域测量技术得到各个光谱成分的频域相位,即可得到待测脉冲光场的三维时空分布。

TERMITES 技术选用非对称迈克耳孙干涉仪根据的是参考光不具有显著的时空耦合这一假设,然而,在实际测量中这一假设是难以严格满足的。因此,TERMITES 的改进技术 INSIGHT 使用的是标准傅里叶变换光谱测量技术中的对称迈克耳孙干涉仪,不再区分待测光与参考光^[115]。在 INSIGHT 测量中,每次延时扫描都可以提供照相机探测平面处待测激光脉冲各光谱成分的光强空间分布,移动照相机可以获得不同探测平面位置处光强的空间分布,此时问题便转化成标准的强度传输方程(TIE)问题^[116],可以使用标准迭代相位恢复算法计算出待测激光波前。INSIGHT 技术对飞秒激光脉冲的时空三维结构表征如图 6(b)、(c)所示。对于待测脉冲的不同光谱成分,其振幅和相位的空间分布都

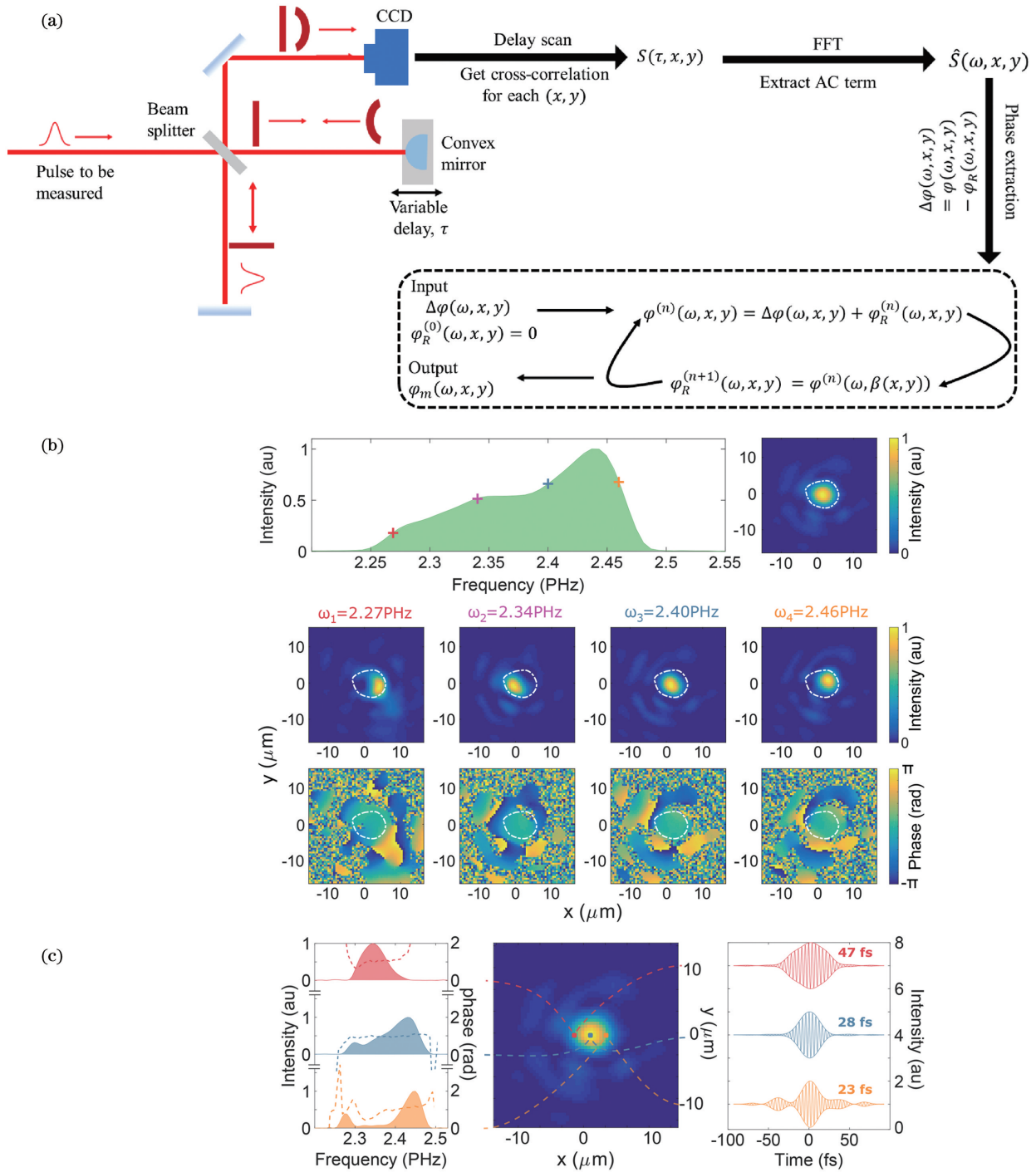


图 6 基于傅里叶变换光谱的飞秒激光时空分布测量技术。(a) TERMITES 的实验装置和数据处理基本流程^[113-114]；(b)(c)基于傅里叶变换光谱的飞秒激光时空分布测量的代表性实验结果^[115]，其中(b)描述了待测脉冲不同光谱成分的空间分布(中间行是振幅分布,最底行是相位分布)，(c)描述了待测脉冲在不同空间位置处的光谱强度和时域波形(体现了该脉冲较强的时空耦合效应)

Fig. 6 Spatiotemporal distribution measurement technology of femtosecond laser pulse based on Fourier transform spectroscopy. (a) Experimental setup and basic process of data processing of TERMITES^[113-114]；(b)(c) representative experimental results of spatiotemporal distribution measurement of femtosecond laser based on Fourier transform spectroscopy^[115]，where image (b) is spatial distribution of different spectral components of laser pulse to be measured (the middle row is spatial amplitude distribution and the bottom row is spatial phase distribution) and image (c) is spectral intensity and time-domain waveform of laser pulse to be measured at different spatial positions (reflects strong spatiotemporal coupling effect of the laser pulse)

体现出显著差异,即表现出空间啁啾效应;待测脉冲不同空间位置处的光谱强度分布和脉冲时间波形也具有显著差异,说明该脉冲具有与空间啁啾效应相对应的严重的时空耦合效应。

相比于 STRIPED-FISH 等基于多光谱成像的飞秒激光准三维时空测量技术,TERMITES 和 INSIGHT 技术以高光谱成像方法为基础,可以测量复杂激光脉冲光场的真正的三维时间和空间分布。然而,基于高光谱成像方法的飞秒激光脉冲表征技术相对于多光谱技术的劣势也是很明显的,即,其原理依赖于傅里叶变换光谱测量,需要对两束光进行亚波长精度的延时扫描,这对测量系统的稳定性和定位精度提出苛刻要求,而且测量时间较长,无法满足现代拍瓦激光装置等低重复频率激光脉冲的测量需求。因此,亟须发展一种可靠的飞秒激光脉冲表征技术,以便在单发条件下完整测量超快光场振幅和相位的时空三维分布。

3.3 飞秒激光脉冲时空耦合效应的定性表征技术

尽管飞秒激光脉冲光场的时空三维分布单发测量目前尚没有公开报道,但很多应用场景下人们仅需要对时空耦合特征进行定性分类或测量一些关键指标,并不需要完整的光场分布信息,因此,一些专门用于测量时空耦合的飞秒激光脉冲诊断技术得到了发展。

定性测量时空耦合的最简单方法是在探测器前放置合适的带通滤光片(或使用法布里-珀罗标准具作为光谱调制器来选择不同波段的光谱),观察远场的光斑轮廓,并将其与全光谱条件下远场的光斑轮廓进行比较,实现时空耦合的定性检测^[117-118]。这种方法可以对时空耦合的种类进行定性分析,但却无法定量给出各类时空耦合量的大小。此外,利用成像光谱仪并扫描入射光斑与光谱仪狭缝之间的相对位置,可以得到待测脉冲的空间-频域光强分布^[119],进而得到时空耦合的定性信息。然而因为没有相位信息,该方法无法确认实测的远场光束畸变与近场空间啁啾之间的定量关系,也无法确定时空耦合的来源。具有全息散焦项的二维衍射光栅可以向入射光束中引入已知色差,导致不同衍射阶次的光束聚焦后呈现空间不对称性,进而可以定性分析输入脉冲的时空耦合特性^[120]。

干涉方法在飞秒激光脉冲的某些特定种类时空耦合定量测量中具有重要应用。径向群延时是一种由紧聚焦透镜或准直系统引入的重要的时空耦合效应,如果在透镜前引入分光元件作为参考光,并使其

与通过透镜系统的时空耦合脉冲干涉,即可得到环状条纹。通过分析环状条纹的几何结构和尺寸,即可定量得到径向群延时的尺寸^[121]。大口径激光可能有较大的具有二次曲面结构的脉冲前沿弯曲(PFC),通过将大口径激光脉冲分为两部分并设置一定延时,在两部分具有不同相对空间位置的条件测量它们的自相关和互相关信号,即可实现基于自参考和二阶互相关的大口径超短激光脉冲径向群延时和脉冲前沿弯曲的直接测量^[122]。

除此之外,还可以利用单发自相关测量将脉冲的时间信息转换为非线性二次谐波的空间信息,然后通过自相关信号宽度获取脉冲前沿倾斜(PFT)的信息^[123]。在多缝时空干涉技术^[124]中,入射光通过多个狭缝后得到多个子脉冲,在傅里叶平面观察对应的夫琅禾费衍射和多缝干涉图样,就可以判断入射光束的时空耦合特征。

4 飞秒激光光场时空测量技术的展望与应用

4.1 时空耦合飞秒激光光场时间空间分布的单发测量

如第 3 章所述,基于多光谱成像方法的飞秒激光脉冲测量技术只能处理少量光谱成分通道,尽管该技术仅能满足简单激光脉冲的准三维时空测量需求,但可以实现单发测量。相反,基于高光谱成像方法的飞秒激光测量技术能够获得任意复杂的飞秒激光脉冲的真实三维时空分布信息,但延时扫描过程繁琐,难以满足大型飞秒激光装置单发测量的需求。因此,需要发展飞秒激光脉冲光场(包含振幅与相位信息)时间和空间三维分布的单发测量技术,尤其是满足重复频率低、时空耦合结构复杂的大型拍瓦飞秒激光装置的脉冲测量技术。任何飞秒激光光场在数学上都可以看作是复数空间的三维数组,而常见的探测器(如 CCD 和 CMOS 相机)仅能测量入射光束光强的时间积分,其在数学上是实数空间中定义的二维数组。飞秒激光光场时空三维分布单发测量的根本技术瓶颈在于如何用探测器定义的二维实空间记录三维复空间中的待测光场。

2006 年提出的压缩感知(CS)原理^[125]可以很好地解决用二维实矩阵(探测器)记录三维复数组(光场时空分布)的问题,为高光谱测量飞秒激光脉冲各个光谱成分的空间分布提供了新思路。2008 年出现的 CASSI 技术利用一个具有已知结构的编

码孔径实现了单发高光谱成像^[126]。在高光谱成像系统中,如图 7(a)所示,成像光学元件首先将待测物成像到编码孔径上,然后对待测图像强度的空间分布进行空间调制。一般情况下编码孔径可以使用随机的二维码。被调制的光束继续通过 $4f$ 成像系统,并被成像到位于像平面处的二维探测器(如 CCD 相机)上。在 $4f$ 系统的焦平面处放置一个透射光栅,可使不同光谱成分的光束的横向位置发生平移。从数学上讲,待测图像各光谱成分的光强空间分布 $f(x, y, \omega)$ 经历了如下操作:1)编码孔径对各个光谱成分进行空间调制(表示为 C);2)色散元件向经过调制的光强三维分布中引入横向平移,平移量与各光谱成分的波长呈近似简单的单调线性关系(表示为 S);3)使用探测器收集被调制和平移的光强信号,在探测器的每个空间位置处对所有波长成分的光强进行积分(表示为 I)。因此,最终测量

得到的二维光强分布 $I(x, y)$ 可以表示为

$$I(x, y) = Of(x, y, \omega) = ISCf(x, y, \omega), \quad (4)$$

式中:O 表示进行编码(C)、平移(S)、积分(I)操作的整个正向过程。从测量结果 $I(x, y)$ 反演 $f(x, y, \omega)$ 在数学上是一个典型的病态逆问题,需要在重构过程中设置正则函数,以提高反演的鲁棒性。对于高光谱成像或者飞秒激光脉冲测量,一个典型的实用正则函数是计算相邻像素间插值的二阶范数的总变差(TV)正则函数。因此,反演过程变成求解目标函数的最小值,即

$$\hat{f} = \operatorname{argmin} \left\{ \frac{1}{2} \|I - Of\|_2^2 + \beta \phi(f) \right\}, \quad (5)$$

式中: $\phi(\cdot)$ 是总变差正则函数; β 是可调正则参数。图 7(c)给出了与图 7(b)测量结果相对应的重构结果,可以看出不同光谱成分的光强分布均实现了准确分辨。

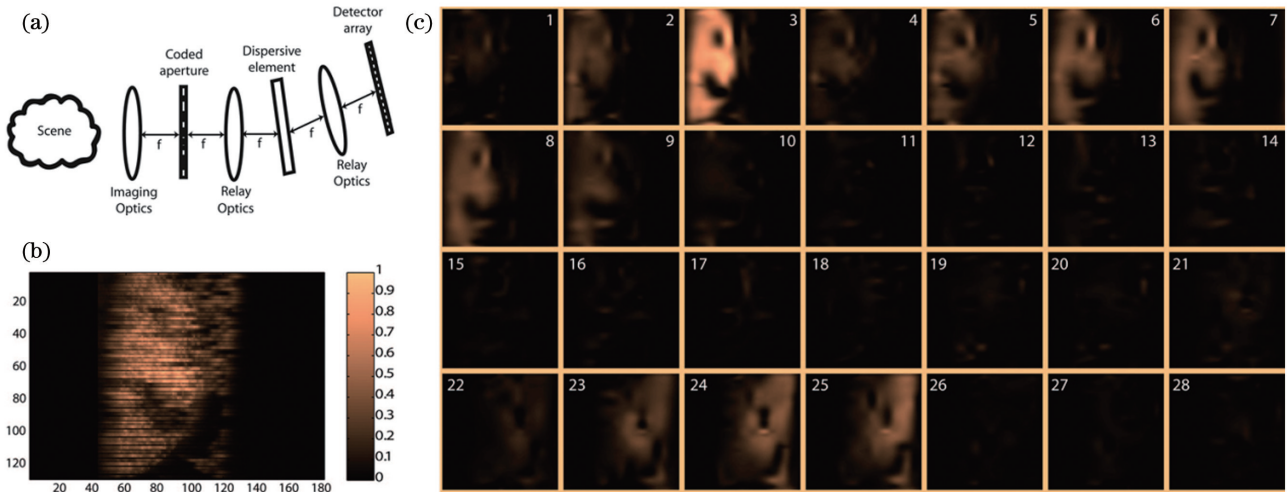


图 7 CASSI 高光谱成像技术^[126]。(a) CASSI 实验装置示意图;(b) CASSI 高光谱成像测量的原始二维数据;(c) 利用反演算法得到的各光谱成分光束的光强空间分布,即高光谱成像图像

Fig. 7 CASSI hyperspectral imaging technology^[126]. (a) Schematic of CASSI experimental setup; (b) two-dimensional original data measured by CASSI hyperspectral imaging technology; (c) spatial intensity distribution of each spectral component of the laser pulse by inversion algorithm, i. e. the hyperspectral images

基于类似 CASSI 技术的压缩成像技术,如面向超快激光脉冲测量和超快成像应用的压缩超快成像(CUP)技术得到了快速发展,可以实现待测超快激光脉冲时域或频域各个成分光强空间分布的单发测量^[127-129]。在频域测量中,可以先向飞秒激光中引入线性啁啾,然后再利用 CASSI 技术进行脉冲高光谱成像,最终得到不同时刻脉冲的光强分布。在时域测量中,一般用条纹相机代替 CASSI 技术中的光栅角色散元件,对纳秒或者皮秒激光光强的时空分布进行直接测量,但其时间分辨率难以达到飞秒量级。

尽管压缩超快成像技术将三维光场分布数据压缩到探测器的二维空间并进行单发测量,但飞秒激光光场时空分布测量的问题仍未解决,主要是因为近年来发展的多种压缩超快成像技术都无法对相位进行测量,难以给出飞秒激光脉冲的波前、啁啾量等重要特性。将基于压缩感知原理的 CASSI 技术和三维相位恢复技术相结合,有望实现飞秒激光光场的三维时空单发测量。本文在此提出两条可行的技术路线:1)将待测激光脉冲分为两路,分别通过透镜等成像元件构建近场和远场光斑,然后用 CASSI 技术测量各个光谱成分的光强近场和远场空间分布,

进而利用相干衍射成像领域广泛使用的相位恢复算法得到各光谱成分的波前和光场的空间分布,最后辅助以 FROG 等传统飞秒激光脉冲时域测量得到光谱相位,实现任意复杂程度的飞秒激光脉冲光场时空分布的单发测量;2)参考 SPIDER 技术,将待测激光分为三份拷贝,较强的拷贝记为“泵浦光”,剩下的两份较弱拷贝分别记为“探测光”和“参考光”,先将泵浦光在非线性 Kerr 介质中聚焦,引入与其光强分布 $|E(k_x, k_y, t)|^2$ 呈正比的折射率变化(该折射率变化被时空重合的探测光记录为相位偏移),然后在探测光和参考光干涉形成的三维全息图中将该相位偏移提取出来,再结合三维全息图中提供的参考光光强信息 $|E(x, y, \omega)|^2$,通过三维相位恢复算法得到待测脉冲光场的三维时空分布(其中 CASSI 技术主要用于三维全息图单发的测量)。目前,实验已证明上述两条技术路线都是可行的^[130]。

4.2 飞秒激光光场时空分布测量在超快泵浦-探测实验中的应用

在超快光学实验中,利用泵浦光激发物质使其状态快速演化,然后在不同延时下用探测光照射被激发物质,则物质的瞬时光学性质(即复折射率或复介电常数)会引起探测光振幅和相位的调制。因此,如果可以对飞秒探测激光脉冲的时空三维光场(振幅与相位)分布进行测量,尤其是进行单发测量,则等价于得到了待测物质在超快激光作用下物态的超快演化过程。

类似于飞秒激光脉冲的时空表征,超快泵浦-探测实验中探测光场的一维时间和一维空间测量同样需要引入成像光谱仪,而探测光振幅与相位的调制测量是通过与参考光进行干涉实现的。因此,光谱干涉技术除了是构成 SPIDER、SRSI 等脉冲测量技术的基础,其本身也被应用于探测光振幅和相位的调制以及超快动力学过程的测量^[131-132],尤其适用于远弱于泵浦光强度的探测光的测量^[133]。光谱干涉已被应用于多种激光物质相互作用过程中超快动力学的测量,包括激光尾场电子加速^[134]、超快超强激光电离^[135-137]、飞秒冲击波^[138-139]、光纤中的非线性相移^[140-141]等,并获得了飞秒时间分辨率和微米空间分辨率。

光谱干涉技术使用的成像光谱仪同样受限于入射狭缝,只能得到一维时间和一维空间信息。为了实现二维空间分辨,可以对探测光和狭缝的相对位置进行横向扫描和多发测量,其思路与飞秒激光脉冲测量中的 SEA-TADPOLE 技术相似。除了扫描

探测光的横向位置,还可以采用扫描延时的超快显微术实现一维纵向时间和二维横向空间分辨^[142-146]。在泵浦-探测实验中,超快显微术的思路是:采用脉宽较窄、无额外色散的近变换极限探测光,在不同延时条件下分别对泵浦光激发的物质状态进行全息成像或者相干衍射成像,以同时得到振幅和相位信息。

以上方法都不可避免地需要进行多发测量,不适合低重复频率或者难以复现事件的泵浦-探测实验。为了实现单发测量,近年来发展了一些用于分析探测光时空特性的多光谱测量方法,这些方法主要是在光谱维度上对探测光的三维时空分布进行有限采样。

STAMP 是一种典型的多光谱测量技术^[147]。如图 8(a)所示,首先在飞秒激光脉冲中引入二阶色散,使之在时域上展宽。例如,利用透明介质使脉冲展宽至飞秒量级,利用棱镜对使脉冲展宽至皮秒量级,利用光纤使脉冲展宽至纳秒量级。接着利用基于空间光调制器的脉冲整形器将适当的光谱成分选取出来,其余的光谱成分通过控制偏振的变换进行去除。由于输入脉冲已经带有啁啾,二阶色散使得光谱成分与时间延时之间具有线性对应关系,因此脉冲整形器输出的是一串具有不同波长的子脉冲,且各子脉冲在频域上可以区分。当该脉冲串完成探测过程后,不同脉冲记录了超快事件在不同时刻对各自二维光强空间分布的调制。最后一步是测量,STAMP 技术没有按照传统方法采用成像光谱仪(会牺牲一个空间维度),而是利用各子脉冲在频域上的差异,搭建了一个基于衍射光栅和潜望镜阵列的光谱分光系统,如此,各子脉冲在其二维空间分布信息被保留的情况下由一个较长的二维探测器的不同位置接收。因此,STAMP 技术可以实现超快事件引起的探测光强度调制时空三维分布的单发测量,但其仍然是一个典型的多光谱技术。

STAMP 设备比较复杂,涉及脉冲整形器和光谱分光系统。为了简化整体设计,脉冲测量的多光谱技术 STRIPED FISH 的光路设计被借鉴用于超快事件的测量,形成了基于光谱滤波的 STAMP 技术^[148]。在改进的光路设计中,衍射光学元件和带通滤波器的组合替代了原来复杂的脉冲整形器和光谱分光系统,极大地简化了设计,而且有利于获得更大的时间帧数(最高 25 帧^[149])和测量带宽。

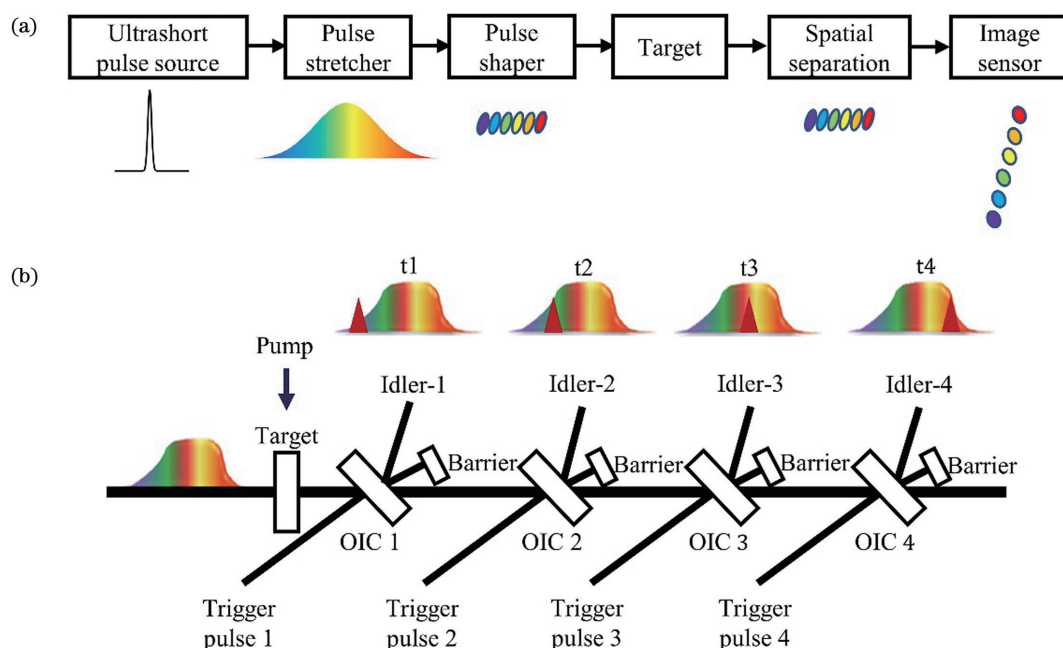


图 8 多光谱成像技术框图。(a)STAMP 技术原理框图^[147];(b)FINOPA 技术原理图^[150]

Fig. 8 Block diagrams of multispectral imaging technology. (a) Principle of STAMP^[147]; (b) principle of FINOPA^[150]

FINOPA 是另一种“多光谱”测量技术,其主要特点是将非线性光学中光学参量的放大过程应用于超快事件的测量^[150]。如图 8(b)所示,啁啾探测脉冲在泵浦-探测装置中记录超快事件,不同时刻的信息被探测光中的不同光谱成分记录。之后,探测脉冲作为信号光被输入到具有多个放大级的非线性光参量放大器中,通过在各级放大过程中控制泵浦光与信号光的延时,就可以使对应不同时刻超快事件的不同光谱成分被放大,同时产生携带该时刻超快事件信息的闲频光。在 FINOPA 技术中,时域测量的帧数由光参量放大器的级数决定,具体成像的时刻可以通过各级泵浦光与信号光的延时灵活调整,成像的时间分辨率由各级泵浦光脉宽和初始信号光啁啾量共同决定。

除了这里讨论的 STAMP 和 FINOPA 技术外,还有多种多光谱方法被用于泵浦-探测实验^[151-154],它们的共同特征是将时域展宽的啁啾脉冲激光作为探测光记录超快事件的时空演化,然后利用多光谱成像方法抽样对数量有限的光谱成分进行成像,达到时空分布测量的目的。然而,这一思路的共同缺点在于光路复杂且采样帧数有限,同时时间分辨率极大地受限于初始啁啾量。随着压缩感知原理在飞秒激光脉冲时空单发测量中的应用,基于高光谱成像方法的任意复杂度飞秒激光时空单发测量已经实现,并被应用于空气电离和成丝实验中等离子体超快时空演化过程的单发探测^[130]。

4.3 飞秒激光驱动的高次谐波和阿秒脉冲光场时空分布测量

近年来,飞秒激光驱动的高次谐波和阿秒脉冲光源取得了一定发展^[15,155],使得探测原子内部电子阿秒尺度的运动成为可能。由于高次谐波和阿秒脉冲波长位于极紫外或软 X 射线区间,适用于这些波段测量的光学器件与传统的光学元件具有较大差异^[156-157],此外,短波辐射与物质相互作用过程中涉及原子内层电子的跃迁,光场与物质相互作用的物理特性和非线性光学特性都发生了较大变化^[158],因此,现有的飞秒激光脉冲测量技术适用于可见光和近红外波段,但难以直接应用到极紫外和软 X 射线波段。

本文针对高次谐波的极紫外或软 X 射线波段阿秒脉冲序列或孤立阿秒脉冲的时间和空间表征^[159],主要是基于高次谐波与飞秒激光在脉冲特性和表征方法上的相似性和关联性进行的。二者的相似性和关联性具体体现在:1)高次谐波同二次谐波、三次谐波、参量输出等类似,都属于基于非线性光学效应的频率转化辐射;2)高次谐波具有相干性、准直性、高亮度等典型激光特性,飞秒激光光场测量的物理量在高次谐波光场中是否有歧义的定义;3)现有高次谐波光场表征技术大量借鉴飞秒激光测量的方法与经验,二者具有高度关联性。

与大量技术已被应用于普通飞秒激光脉冲的时空分布特性测量不同,高次谐波和阿秒脉冲的

测量技术目前还主要局限于时域特性的测量。与飞秒激光类似,高次谐波也可以实现强度自相关测量,用于估算阿秒尺度的平均脉宽^[160]。利用分波前法将极紫外高次谐波光束进行分束并聚焦到气体靶上,可以使气体原子内层的电子发生双光子电离。不同延时下的电离信号等价于待测脉冲的自相关函数,可用于估算脉宽。高次谐波自相关测量不依赖光源的产生方式,等离子体表面高次谐波脉宽的自相关测量已被实验证实^[161-162]。此外,如果在不同延时下对双光子电离的能谱进行测量,就可以得到高次谐波的 FROG 迹图,已有研究人员利用 FROG 测量装置结合相位恢复算法得到了高次谐波脉冲的时域结构和频域相位^[157,163]。

高次谐波的强度自相关和 FROG 测量依靠两个极紫外光子参与的非线性光学过程,如果将其中的一个极紫外光子替换为基频激光光子,那么不同延时下气体介质的光电离信号就等价于待测高次谐波与基频光场的互相关函数。RABBITT 技术是一种典型的互相关技术,在假设阿秒脉冲序列中各脉冲完全相同的前提下,可以从不同延时下离散光电子能谱边带强度的调制中得到脉冲的频域相位和时域波形^[164]。阿秒条纹相机是基于高次谐波和基频光场互相关测量技术设计的^[165]。由于极紫外高次谐波光电离时刻对应的基频光场矢势决定了最终的电子能量,因此测量不同延时下的光电子能谱可以得到待测阿秒脉冲的信息^[166]。另外,考虑到阿秒条纹相机测量过程中光电子能谱随延时调制的数学关系与 FROG 可类比,因此可以利用 FROG 重构算法(如 PCGPA 算法)恢复高次谐波频域相位,并重构孤立阿秒脉冲或阿秒脉冲序列的时间波形^[167]。这种与 FROG 技术类似的阿秒条纹相机方法被称为 FROG-CRAB,它是高次谐波时域测量的重要方法^[168]。

以上自相关和互相关高次谐波脉冲测量技术都以气体介质的光电离作为脉冲测量所需的非线性光学过程,然而,在这种非原位(*ex-situ*)测量过程中,气体介质不同位置产生的光电子被集中采集,无法分辨待测脉冲的空间分布信息。在高次谐波产生的极端非线性过程中,驱动激光的光强不均匀性会引入显著的内禀相位空间不均匀分布,且该分布与谐波阶次有关^[169]。因此,高次谐波是一种天然携带强烈时空耦合的超快光学脉冲,需要进行时空分辨测量。

与非原位(*ex-situ*)测量相比,原位(*in-situ*)测量引入另一束光强较弱的调制光场参与微扰并调控高次谐波的产生。将这一极端非线性光学过程同时用于脉冲测量,就可以达到高次谐波产生并“原位”测量的目的。早期的原位测量技术使用飞秒基频激光脉冲及强度低三至四个量级的二次谐波组成双色光场共同驱动高次谐波,同时进入气体介质激发高次谐波。在二次谐波作用下,基频光高次谐波中相邻两脉冲相位的反对称关系被破坏,因此出现了强度随延时周期性调制变化的偶次谐波。根据各阶次偶次谐波强度调制的相位差异,可以得到各阶次谐波对应的光子辐射时间,即阿秒啁啾或脉冲频域相位,进而可以得到高次谐波中各阿秒脉冲的时域波形^[170]。

为了实现高次谐波光场时空分辨的测量,近年来发展的原位测量技术在基频驱动光和二次谐波微扰光之间引入一个小角度,使产生高次谐波的近场平面上沿 y 方向的不同空间位置对应不同的延时,因此,高次谐波近场的相位调制不同(图 9)。这种高次谐波近场相位沿 y 方向的差异体现为波前的调制,并影响远场光强分布,且该远场光强分布与高次谐波近场光场关系的数学模型与 FROG 技术中的数学模型相同。在实验中,通过改变基频光和二次谐波微扰调控光的延时,可以观测到远场光强分布的变化,得到一个二维 FROG 迹图,然后利用 FROG 技术中常用的 PCGPA 相位恢复算法即可得到孤立阿秒脉冲的近场时空分布信息^[171]。原位测量技术适用于驱动光场与极紫外输出光严格锁相的高次谐波过程,不仅可以测量气体的高次谐波,还可以实现激光烧蚀固体表面形成的等离子体临界密度面上产生的高次谐波光场的时空测量^[172],因此该方法又被称为“叠层衍射测量”。

原位测量技术中需要测量高次谐波的光谱,其测量类似于飞秒激光脉冲的测量,极紫外光谱仪的狭缝同样会制约垂直狭缝方向的空间分辨能力。因此,高次谐波光场时空分布的原位测量只能得到一维时间和一维空间分布信息,目前尚无法得到高次谐波光场的三维时空分布。以气体高次谐波为例,原位测量技术对高次谐波时域信息的获取主要是通过微扰光对电子波包在光场中加速过程的调制完成的,获取的信息并未包含电子复合相位的贡献,因此人们对原位测量技术是否准确反映了完整的高次谐波频域相位存在争议^[173]。尽管高次谐波和阿秒光学已经发展了 20

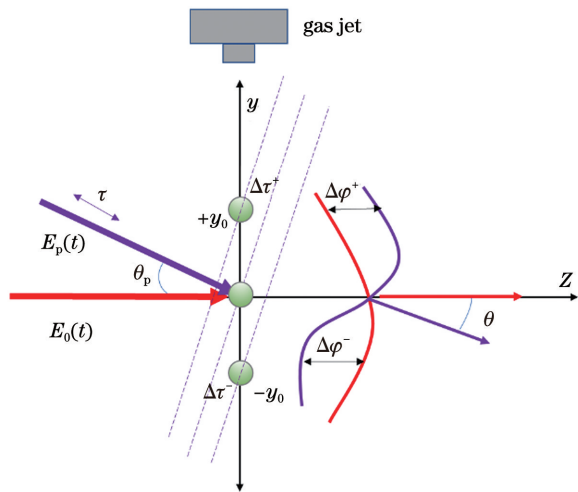


图 9 空间结构信息原位测量的原理。只考虑 y 方向上三个原子引起的 XUV 脉冲传播方向的改变,微扰光(紫色)与驱动光(红色)以一定的角度 θ_p 和延时 τ 入射, $+y_0$ 处和 $-y_0$ 处的原子对应不同的延时 $\Delta\tau^+$ 和 $\Delta\tau^-$, 因此与未加入微扰光时的 XUV 脉冲波前(红色)相比,加入微扰光后脉冲波前改变(紫色),导致传播方向的改变角度为 θ

Fig. 9 Principle of *in-situ* measurement of spatial structure information. Consider the change in the propagation direction of the XUV pulse caused by three atoms in the y direction. Perturbation light (purple) and driving light (red) are incident with an angle θ_p and delay τ . The atoms at $+y_0$ and $-y_0$ correspond to different delays $\Delta\tau^+$ and $\Delta\tau^-$. Compared with the XUV pulse wavefront (red) without perturbation, the pulse wavefront changes (purple) after adding perturbation light, causing the propagation direction to change by an angle of θ

多年,且在研究原子、分子、凝聚态物质阿秒时间尺度演化动力学领域具有重要应用,但真正实现光场准确的三维时空分布测量仍是巨大的技术挑战,需要进一步深入研究。

5 结 论

飞秒光场的时空测量对于超快光学研究具有重要意义。一方面,超快光学研究的基本工具——飞秒激光脉冲,具有复杂的时空结构,飞秒激光脉冲的时空测量不仅对于优化激光装置具有指导作用,而且作为模拟仿真的输入条件,对于物理实验数据分析也具有重要作用;另一方面,随着超快光学技术,尤其是泵浦-探测实验技术的广泛应用,需要对探测光进行更全面的测量,以提取其

中携带的被激光激发的物质的瞬态光学特性。因此,未来的飞秒光场时空测量技术的基本要求包括:1)单发测量;2)振幅和相位信息的同步测量;3)分辨横向二维空间和纵向一维时间分布信息。针对特殊需求,可能还需要对飞秒激光脉冲的绝对相位或载波包络相位(CEP)、偏振分布、光学轨道角动量(OAM)等关键光场信息进行测量,而这些重要的特殊光场信息的表征可以在实验上通过一系列光学效应转化为满足上述三条基本要求的飞秒光场时空测量。

在波段维度上,随着自由电子激光、强场激光光学的不断发展,超快动力学的研究已经拓展到极紫外和 X 射线波段。尽管近 10 年来极紫外高次谐波以及其他超快 X 射线相干光源技术和脉冲诊断技术都取得了一定进展,但相对于可见光和红外超短激光脉冲的多种时空表征手段,短波飞秒甚至阿秒脉冲的时空表征测量才刚刚起步,需要进一步深入研究。以高次谐波为例,如果能够实现极紫外孤立阿秒脉冲光场三维时空分布的单发测量,那么有望将超快泵浦-探测实验的分辨率普遍提高到阿秒时间和纳米空间水平。

压缩感知将高维数据压缩映射到较低维度,从原理上有利于将复杂的三维光场信息在单发测量中投影到二维探测器上,这也是当前能够实现飞秒激光光场时空分布单发测量的关键。另外,基于相位恢复算法的相干衍射成像技术可以将相干光场的相位信息和振幅信息相互转化,更为重要的是该技术在极紫外和 X 射线波段的天然适用性有利于其在各波段实现振幅和相位的同步测量。因此有理由相信,结合压缩感知技术和相干衍射成像技术的飞秒或阿秒光场时空分布单发测量,将为未来的超快光学研究提供新机遇。

参 考 文 献

- [1] Moulton P F. Spectroscopic and laser characteristics of $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1986, 3(1): 125-133.
- [2] Spence D E, Kean P N, Sibbett W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked $\text{Ti}:\text{sapphire}$ laser [J]. Optics Letters, 1991, 16(1): 42-44.
- [3] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses [J]. Optics Communications, 1985, 56(3): 219-221.
- [4] 胡明列, 宋有建, 刘博文, 等. 光子晶体光纤飞秒激光技术研究进展及其前沿应用 [J]. 中国激光,

- 2009, 36(7): 1660-1670.
Hu M L, Song Y J, Liu B W, et al. Development and advanced applications of femtosecond photonic crystal fiber laser technique[J]. Chinese Journal of Lasers, 2009, 36(7): 1660-1670.
- [5] 王海林, 董静, 刘贺言, 等. 高功率超快碟片激光技术研究进展(特邀)[J]. 光子学报, 2021, 50(8): 0850208.
Wang H L, Dong J, Liu H Y, et al. Research progress of high-power ultrafast thin-disk laser technology (invited) [J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(8): 0850208.
- [6] 刘一州, 乔文超, 高空, 等. 高功率超快光纤激光技术发展研究 [J]. 中国激光, 2021, 48(12): 1201003.
Liu Y Z, Qiao W C, Gao K, et al. Development of high-power ultrafast fiber laser technology [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(12): 1201003.
- [7] 俞冰昊, 郝强, 曾和平. 55 fs, 510 mW 掺铒光纤飞秒激光器[J]. 光学学报, 2021, 41(19): 1936001.
Yu B H, Hao Q, Zeng H P. 55 fs, 510 mW erbium-doped fiber femtosecond laser [J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(19): 1936001.
- [8] Cartlidge E. The light fantastic[J]. Science, 2018, 359(6374): 382-385.
- [9] 冷雨欣. 上海超强超短激光实验装置[J]. 中国激光, 2019, 46(1): 0100001.
Leng Y X. Shanghai superintense ultrafast laser facility [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(1): 0100001.
- [10] 周朴, 冷进勇, 肖虎, 等. 高平均功率光纤激光的研究进展与发展趋势 [J]. 中国激光, 2021, 48(20): 2000001.
Zhou P, Leng J Y, Xiao H, et al. High average power fiber lasers: research progress and future prospect [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(20): 2000001.
- [11] Müller M, Aleshire C, Klenke A, et al. 10.4 kW coherently combined ultrafast fiber laser [J]. Optics Letters, 2020, 45(11): 3083-3086.
- [12] 高聪, 代江云, 李峰云, 等. 自研万瓦级同带泵浦掺镱石英玻璃光纤 [J]. 中国激光, 2020, 47(3): 0315001.
Gao C, Dai J Y, Li F Y, et al. Homemade 10-kW ytterbium-doped aluminophosphosilicate fiber for tandem pumping [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(3): 0315001.
- [13] Hassan M T, Luu T T, Moulet A, et al. Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons [J]. Nature, 2016, 530(7588): 66-70.
- [14] 魏志义, 钟诗阳, 贺新奎, 等. 阿秒光学进展及发展趋势 [J]. 中国激光, 2021, 48(5): 0501001.
Wei Z Y, Zhong S Y, He X K, et al. Progresses and trends in attosecond optics [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(5): 0501001.
- [15] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. Reviews of Modern Physics, 2009, 81(1): 163-234.
- [16] Esarey E, Schroeder C B, Leemans W P. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators [J]. Reviews of Modern Physics, 2009, 81(3): 1229-1285.
- [17] Kneip S, McGuffey C, Martins J L, et al. Bright spatially coherent synchrotron X-rays from a tabletop source [J]. Nature Physics, 2011, 7(9): 737.
- [18] Phuoc K T, Corde S, Thaury C, et al. All-optical Compton gamma-ray source [J]. Nature Photonics, 2012, 6(5): 308-311.
- [19] Weiner A. Ultrafast optics [M]. New Jersey: John Wiley & Sons, Inc., 2009.
- [20] Zewail A H. Femtochemistry: atomic-scale dynamics of the chemical bond using ultrafast lasers (Nobel lecture) [J]. Angewandte Chemie International Edition, 2000, 39(15): 2586-2631.
- [21] Potter E D, Herek J L, Pedersen S, et al. Femtosecond laser control of a chemical reaction [J]. Nature, 1992, 355(6355): 66-68.
- [22] Reid G D, Wynne K. Ultrafast laser technology and spectroscopy [J]. Encyclopedia of Analytical Chemistry, 2000, 35(4): 13644-13670.
- [23] Fleming G. Chemical applications of ultrafast spectroscopy [M]. New York: Oxford University Press, 1986.
- [24] Alfano R R. The supercontinuum laser source: the ultimate white light [M]. 3rd ed. New York: Springer, 2016.
- [25] Betzig E. Nobel lecture: single molecules, cells, and super-resolution optics [J]. Reviews of Modern Physics, 2015, 87(4): 1153-1168.
- [26] Sigal Y M, Zhou R B, Zhuang X W. Visualizing and discovering cellular structures with super-resolution microscopy [J]. Science, 2018, 361(6405): 880-887.
- [27] Schermelleh L, Ferrand A, Huser T, et al. Super-resolution microscopy demystified [J]. Nature Cell Biology, 2019, 21(1): 72-84.
- [28] Weber H P. Method for pulsewidth measurement of ultrashort light pulses generated by phase-locked lasers using nonlinear optics [J]. Journal of Applied Physics, 1967, 38(5): 2231-2234.
- [29] Kane D J, Trebino R. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical

- gating[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1993, 29(2): 571-579.
- [30] Iaconis C, Walmsley I A. Spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction of ultrashort optical pulses [J]. *Optics Letters*, 1998, 23(10): 792-794.
- [31] Akturk S, Gu X, Bowlan P, et al. Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses [J]. *Journal of Optics*, 2010, 12(9): 093001.
- [32] Chen J, Wan C H, Zhan Q W. Vectorial optical fields: recent advances and future prospects [J]. *Science Bulletin*, 2018, 63(1): 54-74.
- [33] Shen Y, Wang X, Xie Z, et al. Optical vortices 30 years on: OAM manipulation from topological charge to multiple singularities [J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 90.
- [34] Trebino R, Jafari R, Akturk S A, et al. Highly reliable measurement of ultrashort laser pulses [J]. *Journal of Applied Physics*, 2020, 128(17): 171103.
- [35] Diels J. Ultrashort laser pulse phenomena: fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale [M]. 2nd ed. New York: Elsevier, 2006.
- [36] Stark H. Image recovery: theory and application [M]. New York: Elsevier, 2013.
- [37] Delong K W, Fittinghoff D N, Trebino R, et al. Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections [J]. *Optics Letters*, 1994, 19(24): 2152-2154.
- [38] Kane D J. Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1999, 35(4): 421-431.
- [39] Kane D J. Principal components generalized projections: a review [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2008, 25(6): A120-A132.
- [40] Jafari R, Jones T, Trebino R. 100% reliable algorithm for second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 2112-2124.
- [41] Dadap J I, Focht G B, Reitze D H, et al. Two-photon absorption in diamond and its application to ultraviolet femtosecond pulse-width measurement [J]. *Optics Letters*, 1991, 16(7): 499-501.
- [42] Takagi Y, Kobayashi T, Yoshihara K, et al. Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors [J]. *Optics Letters*, 1992, 17(9): 658-660.
- [43] Etchepare J, Grillon G, Orszag A. Third order autocorrelation study of amplified subpicosecond laser pulses [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1983, 19(5): 775-778.
- [44] Sarukura N, Watanabe M, Endoh A, et al. Single-shot measurement of subpicosecond KrF pulse width by three-photon fluorescence of the XeF visible transition [J]. *Optics Letters*, 1988, 13(11): 996-998.
- [45] Trebino R. Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulses [M]. Boston: Springer, 2000.
- [46] Diels J C, Fontaine J J, Simoni F. Phase sensitive measurements of femtosecond laser pulses from a ring cavity [C] // *Lasers' 83, Proceedings of the International Conference*. 1985: 348-355.
- [47] Diels J C, Fontaine J J, McMichael I C, et al. Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy [J]. *Applied Optics*, 1985, 24(9): 1270-1282.
- [48] Kane D J, Trebino R. Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating [J]. *Optics Letters*, 1993, 18(10): 823-825.
- [49] Clement T S, Taylor A J, Kane D J. Single-shot measurement of the amplitude and phase of ultrashort laser pulses in the violet [J]. *Optics Letters*, 1995, 20(1): 70-72.
- [50] Sweetser J N, Fittinghoff D N, Trebino R. Transient-grating frequency-resolved optical gating [J]. *Optics Letters*, 1997, 22(8): 519-521.
- [51] Tsang T, Krumbügel M A, Delong K W, et al. Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(17): 1381-1383.
- [52] Mourou G. Nobel lecture: extreme light physics and application [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2019, 91(3): 030501.
- [53] Brun A, Georges P, Le Saux G, et al. Single-shot characterization of ultrashort light pulses [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1991, 24(8): 1225-1233.
- [54] Taft G, Rundquist A, Murnane M M, et al. Measurement of 10-fs laser pulses [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 1996, 2(3): 575-585.
- [55] Stibenz G, Steinmeyer G. Interferometric frequency-resolved optical gating [J]. *Optics Express*, 2005, 13(7): 2617-2626.
- [56] Hytti J, Escoto E, Steinmeyer G. Third-harmonic interferometric frequency-resolved optical gating [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2017, 34(11): 2367-2375.

- [57] Hyyti J, Escoto E, Steinmeyer G. Pulse retrieval algorithm for interferometric frequency-resolved optical gating based on differential evolution [J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2017, 88 (10): 103102.
- [58] Froehly C, Lacourt A, Viénot J C. Time impulse response and time frequency response of optical pupils: experimental confirmations and applications [J]. *Nouvelle Revue d'Optique*, 1973, 4 (4): 183-196.
- [59] Fittinghoff D N, Bowie J L, Sweetser J N, et al. Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(12): 884-886.
- [60] Lepetit L, Chériaux G, Joffre M. Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1995, 12(12): 2467-2474.
- [61] Oksenhendler T, Coudreau S, Forget N, et al. Self-referenced spectral interferometry [J]. *Applied Physics B*, 2010, 99(1/2): 7-12.
- [62] Minkovski N, Petrov G I, Saltiel S M, et al. Nonlinear polarization rotation and orthogonal polarization generation experienced in a single-beam configuration [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2004, 21(9): 1659-1664.
- [63] Jullien A, Canova L, Albert O, et al. Spectral broadening and pulse duration reduction during cross-polarized wave generation: influence of the quadratic spectral phase [J]. *Applied Physics B*, 2007, 87(4): 595-601.
- [64] Liu J, Jiang Y L, Kobayashi T, et al. Self-referenced spectral interferometry based on self-diffraction effect [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 29(1): 29-34.
- [65] Oksenhendler T. Self-referenced spectral interferometry theory [EB/OL]. (2012-04-22) [2021-02-05]. <https://arxiv.org/abs/1204.4949>.
- [66] Stibenz G, Steinmeyer G. Optimizing spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2006, 77 (7): 073105.
- [67] Baum P, Lochbrunner S, Riedle E. Zero-additional-phase SPIDER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(2): 210-212.
- [68] Lozovoy V V, Pastirk I, Dantus M. Multiphoton intrapulse interference. IV. Ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(7): 775-777.
- [69] Miranda M, Arnold C L, Fordell T, et al. Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique [J]. *Optics Express*, 2012, 20(17): 18732-18743.
- [70] Miranda M, Fordell T, Arnold C, et al. Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirrors and glass wedges [J]. *Optics Express*, 2012, 20(1): 688-697.
- [71] Meshulach D, Silberberg Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse [J]. *Nature*, 1998, 396(6708): 239-242.
- [72] Walowicz K A, Pastirk I, Lozovoy V V, et al. Multiphoton intrapulse interference. 1. control of multiphoton processes in condensed phases [J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2002, 106(41): 9369-9373.
- [73] Xu B W, Gunn J M, Cruz J M D, et al. Quantitative investigation of the multiphoton intrapulse interference phase scan method for simultaneous phase measurement and compensation of femtosecond laser pulses [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2006, 23(4): 750-759.
- [74] Miranda M, Penedones J, Guo C, et al. Fast iterative retrieval algorithm for ultrashort pulse characterization using dispersion scans [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2016, 34(1): 190-197.
- [75] Fabris D, Holgado W, Silva F, et al. Single-shot implementation of dispersion-scan for the characterization of ultrashort laser pulses [J]. *Optics Express*, 2015, 23(25): 32803-32808.
- [76] Bor Z, Horváth Z L. Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description [J]. *Optics Communications*, 1992, 94(4): 249-258.
- [77] Bowlan P, Fuchs U, Trebino R, et al. Measuring the spatiotemporal electric field of tightly focused ultrashort pulses with sub-micron spatial resolution [J]. *Optics Express*, 2008, 16(18): 13663-13675.
- [78] Bowlan P, Gabolde P, Trebino R. Directly measuring the spatio-temporal electric field of focusing ultrashort pulses [J]. *Optics Express*, 2007, 15(16): 10219-10230.
- [79] Horváth Z L, Bor Z. Focusing of femtosecond pulses having Gaussian spatial distribution [J]. *Optics Communications*, 1993, 100 (1/2/3/4): 6-12.
- [80] Bourassin-Bouchet C, Stephens M, de Rossi S, et al. Duration of ultrashort pulses in the presence of spatio-temporal coupling [J]. *Optics Express*,

- 2011, 19(18): 17357-17371.
- [81] Dorrer C. Spatiotemporal metrology of broadband optical pulses[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2019, 25(4): 3100216.
- [82] Gallmann L, Steinmeyer G, Sutter D H, et al. Spatially resolved amplitude and phase characterization of femtosecond optical pulses [J]. Optics Letters, 2001, 26(2): 96-98.
- [83] Kosik E M, Radunsky A S, Walmsley I A, et al. Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit [J]. Optics Letters, 2005, 30(3): 326-328.
- [84] Witting T, Austin D R, Walmsley I A. Improved ancilla preparation in spectral shearing interferometry for accurate ultrafast pulse characterization [J]. Optics Letters, 2009, 34(7): 881-883.
- [85] Witting T, Austin D R, Barillot T, et al. Self-referenced characterization of space-time couplings in near-single-cycle laser pulses[J]. Optics Letters, 2016, 41(10): 2382-2385.
- [86] Witting T, Weber S J, Tisch J W G, et al. Spatio-temporal characterization of mid-infrared laser pulses with spatially encoded spectral shearing interferometry[J]. Optics Express, 2012, 20(27): 27974-27980.
- [87] Austin D R, Witting T, Weber S J, et al. Spatio-temporal characterization of intense few-cycle 2 μm pulses [J]. Optics Express, 2016, 24 (21): 24786-24798.
- [88] Dorrer C, Walmsley I A. Simple linear technique for the measurement of space-time coupling in ultrashort optical pulses[J]. Optics Letters, 2002, 27(21): 1947-1949.
- [89] Dorrer C, Kosik E M, Walmsley I A. Spatio-temporal characterization of the electric field of ultrashort optical pulses using two-dimensional shearing interferometry [J]. Applied Physics B, 2002, 74(1): s209-s217.
- [90] Dorrer C, Kosik E M, Walmsley I A. Direct space time-characterization of the electric fields of ultrashort optical pulses[J]. Optics Letters, 2002, 27(7): 548-550.
- [91] Jolly S W, Gobert O, Quéré F. Spatio-temporal characterization of ultrashort laser beams: a tutorial [J]. Journal of Optics, 2020, 22(10): 103501.
- [92] Oksenhendler T, Bizouard P, Albert O, et al. High dynamic, high resolution and wide range single shot temporal pulse contrast measurement [J]. Optics Express, 2017, 25(11): 12588-12600.
- [93] Bragheri F, Faccio D, Bonaretti F, et al. Complete retrieval of the field of ultrashort optical pulses using the angle-frequency spectrum [J]. Optics Letters, 2008, 33(24): 2952-2954.
- [94] Eilenberger F, Brown A, Minardi S, et al. Imaging cross-correlation FROG: measuring ultrashort, complex, spatiotemporal fields[J]. Optics Express, 2013, 21(22): 25968-25976.
- [95] Mehta N, Yang C, Xu Y, et al. Characterization of the spatiotemporal evolution of ultrashort optical pulses using FROG holography[J]. Optics Express, 2014, 22(9): 11099-11106.
- [96] Chang C I. Hyperspectral imaging: techniques for spectral detection and classification[M]. New York: Springer, 2003.
- [97] Bowlan P, Gabolde P, Coughlan M A, et al. Measuring the spatiotemporal electric field of ultrashort pulses with high spatial and spectral resolution [J]. Journal of the Optical Society of America B, 2008, 25(6): A81-A92.
- [98] Alonso B, Sola Í J, Varela Ó, et al. Spatiotemporal amplitude-and-phase reconstruction by Fourier-transform of interference spectra of high-complex-beams[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2010, 27(5): 933-940.
- [99] Gallet V, Kahaly S, Gobert O, et al. Dual spectral-band interferometry for spatio-temporal characterization of high-power femtosecond lasers[J]. Optics Letters, 2014, 39(16): 4687-4690.
- [100] Gallet V, Pariente G, Kahaly S, et al. Spatio-temporal characterization techniques of high-power femtosecond laser chains[J]. Proceedings of SPIE, 2014, 8972: 89720S.
- [101] Hagen N A, Kudenov M W. Review of snapshot spectral imaging technologies[J]. Optical Engineering, 2013, 52(9): 090901.
- [102] Gabolde P, Trebino R. Single-shot measurement of the full spatio-temporal field of ultrashort pulses with multi-spectral digital holography [J]. Optics Express, 2006, 14(23): 11460-11467.
- [103] Grace E, Ma T, Guang Z, et al. Single-shot complete spatiotemporal measurement of terawatt laser pulses [J]. Journal of Optics, 2021, 23 (7): 075505.
- [104] O'Shea P, Kimmel M, Gu X, et al. Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement [J]. Optics Letters, 2001, 26(12): 932-934.
- [105] Guang Z, Rhodes M, Trebino R. Measurement of the ultrafast lighthouse effect using a complete spatiotemporal pulse-characterization technique[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2016, 33(9): 1955-1962.
- [106] Yi Y J, Xu Y M, Zhu P, et al. Three-dimensional

- spatiotemporal self-referenced characterization of ultrashort pulses using the coherent diffraction imaging technique[J]. *Proceedings of SPIE*, 2021, 11781: 117811P.
- [107] Cousin S L, Bueno J M, Forget N, et al. Three-dimensional spatiotemporal pulse characterization with an acousto-optic pulse shaper and a Hartmann-Shack wavefront sensor[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(15): 3291-3293.
- [108] Hauri C P, Biegert J, Keller U, et al. Validity of wave-front reconstruction and propagation of ultrabroadband pulses measured with a Hartmann-Shack sensor[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(12): 1563-1565.
- [109] Kueny E, Meier J, Levecq X, et al. Wavefront analysis of a white-light supercontinuum[J]. *Optics Express*, 2018, 26(24): 31299-31306.
- [110] Kim Y G, Kim J I, Yoon J W, et al. Single-shot spatiotemporal characterization of a multi-PW laser using a multispectral wavefront sensing method[J]. *Optics Express*, 2021, 29(13): 19506-19514.
- [111] Alonso B, Miranda M, Sola Í J, et al. Spatiotemporal characterization of few-cycle laser pulses [J]. *Optics Express*, 2012, 20(16): 17880-17893.
- [112] Boniface A, Gusachenko I, Dholakia K, et al. Rapid broadband characterization of scattering medium using hyperspectral imaging [J]. *Optica*, 2019, 6(3): 274-279.
- [113] Miranda M, Kotur M, Rudawski P, et al. Spatiotemporal characterization of ultrashort laser pulses using spatially resolved Fourier transform spectrometry[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(17): 5142-5145.
- [114] Pariente G, Gallet V, Borot A, et al. Space-time characterization of ultra-intense femtosecond laser beams [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(8): 547-553.
- [115] Borot A, Quéré F. Spatio-spectral metrology at focus of ultrashort lasers: a phase-retrieval approach [J]. *Optics Express*, 2018, 26(20): 26444-26461.
- [116] Zuo C, Li J J, Sun J S, et al. Transport of intensity equation: a tutorial [J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2020, 135: 106187.
- [117] Börzsönyi A, Mangin-Thro L, Cheriaux G, et al. Two-dimensional single-shot measurement of angular dispersion for compressor alignment [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(4): 410-412.
- [118] Jolly S W, Gobert O, Jeandet A, et al. Controlling the velocity of a femtosecond laser pulse using refractive lenses[J]. *Optics Express*, 2020, 28(4): 4888-4897.
- [119] Kahaly S, Monchocé S, Gallet V, et al. Investigation of amplitude spatio-temporal couplings at the focus of a 100 TW-25 fs laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(5): 054103.
- [120] Bahk S W, Dorrer C, Bromage J. Chromatic diversity: a new approach for characterizing spatiotemporal coupling of ultrashort pulses [J]. *Optics Express*, 2018, 26(7): 8767-8777.
- [121] Bor Z, Gogolak Z, Szabo G. Femtosecond-resolution pulse-front distortion measurement by time-of-flight interferometry [J]. *Optics Letters*, 1989, 14(16): 862-864.
- [122] Wu F X, Xu Y, Li Z Y, et al. A novel measurement scheme for the radial group delay of large-aperture ultra-short laser pulses [J]. *Optics Communications*, 2016, 367: 259-263.
- [123] Sacks Z, Mourou G, Danielius R. Adjusting pulse-front tilt and pulse duration by use of a single-shot autocorrelator[J]. *Optics Letters*, 2001, 26(7): 462-464.
- [124] Li Z Y, Miyanaga N, Kawanaka J. Single-shot real-time detection technique for pulse-front tilt and curvature of femtosecond pulsed beams with multiple-slit spatiotemporal interferometry [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(13): 3156-3159.
- [125] Donoho D L. Compressed sensing [J]. *IEEE Transactions on Information Theory*, 2006, 52(4): 1289-1306.
- [126] Wagadarikar A, John R, Willett R, et al. Single disperser design for coded aperture snapshot spectral imaging [J]. *Applied Optics*, 2008, 47(10): B44-B51.
- [127] Gao L, Liang J, Li C, et al. Single-shot compressed ultrafast photography at one hundred billion frames per second[J]. *Nature*, 2014, 516(7529): 74-77.
- [128] Liang J, Zhu L, Wang L V. Single-shot real-time femtosecond imaging of temporal focusing [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7: 42.
- [129] Yang C S, Cao F Y, Qi D L, et al. Hyperspectrally compressed ultrafast photography [J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(2): 023902.
- [130] Tang H C, Men T, et al. Single-shot compressed optical field topography, submitted.
- [131] Tokunaga E, Terasaki A, Kobayashi T. Frequency-domain interferometer for femtosecond time-resolved phase spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 1992, 17(16): 1131-1133.
- [132] Geindre J P, Audebert P, Rebibo S, et al. Single-shot spectral interferometry with chirped pulses[J]. *Optics Letters*, 2001, 26(20): 1612-1614.

- [133] le Blanc S P, Gaul E W, Matlis N H, et al. Single-shot measurement of temporal phase shifts by frequency-domain holography [J]. *Optics Letters*, 2000, 25(10): 764-766.
- [134] Marquès J, Dorchies F, Audebert P, et al. Frequency increase and damping of nonlinear electron plasma oscillations in cylindrical symmetry [J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78 (18): 3463-3466.
- [135] Geindre J P, Audebert P, Rousse A, et al. Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma [J]. *Optics Letters*, 1994, 19(23): 1997-1999.
- [136] Siders C W, Sp L B, Fisher D, et al. Laser Wakefield excitation and measurement by femtosecond longitudinal interferometry [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(19): 3570-3573.
- [137] Marquès J R, Geindre J P, Amiranoff F, et al. Temporal and spatial measurements of the electron density perturbation produced in the wake of an ultrashort laser pulse [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(19): 3566-3569.
- [138] Evans R, Badger A D, Falliès F, et al. Time- and space-resolved optical probing of femtosecond-laser-driven shock waves in aluminum [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(16): 3359-3362.
- [139] Benuzzi-Mounaix A, Koenig M, Boudenne J M, et al. Chirped pulse reflectivity and frequency domain interferometry in laser driven shock experiments [J]. *Physical Review E*, 1999, 60(3): R2488-R2491.
- [140] Cao X D, Zheng L, Meyerhofer D D. Measurement of group-velocity walk-off of short pulses in nonlinear crystals: a novel method [J]. *Optics Letters*, 1995, 20(4): 392.
- [141] Wilson P T, Jiang Y, Aktsipetrov O A, et al. Frequency-domain interferometric second-harmonic spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 1999, 24 (7): 496-498.
- [142] Abdollahpour D, Papazoglou D G, Tzortzakis S. Four-dimensional visualization of single and multiple laser filaments using in-line holographic microscopy [J]. *Physical Review A*, 2011, 84(5): 053809.
- [143] Seo M, Boubanga-Tombet S, Yoo J, et al. Ultrafast optical wide field microscopy [J]. *Optics Express*, 2013, 21(7): 8763-8772.
- [144] Ni G X, Wang L, Goldflam M D, et al. Ultrafast optical switching of infrared plasmon polaritons in high-mobility graphene [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(4): 244-247.
- [145] Domke M, Rapp S, Schmidt M, et al. Ultrafast pump-probe microscopy with high temporal dynamic range [J]. *Optics Express*, 2012, 20(9): 10330-10338.
- [146] Lemke C, Leißner T, Klick A, et al. Measurement of surface plasmon autocorrelation functions [J]. *Optics Express*, 2013, 21(22): 27392-27401.
- [147] Nakagawa K, Iwasaki A, Oishi Y, et al. Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP) [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(9): 695-700.
- [148] Suzuki T, Isa F, Fujii L, et al. Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP) utilizing spectral filtering [J]. *Optics Express*, 2015, 23 (23): 30512-30522.
- [149] Suzuki T, Hida R, Yamaguchi Y, et al. Single-shot 25-frame burst imaging of ultrafast phase transition of Ge₂Sb₂Te₅ with a sub-picosecond resolution [J]. *Applied Physics Express*, 2017, 10(9): 092502.
- [150] Zeng X K, Zheng S Q, Cai Y, et al. High-spatial-resolution ultrafast framing imaging at 15 trillion frames per second by optical parametric amplification [J]. *Advanced Photonics*, 2020, 2: 056002.
- [151] Goda K, Tsia K K, Jalali B. Serial time-encoded amplified imaging for real-time observation of fast dynamic phenomena [J]. *Nature*, 2009, 458(7242): 1145-1149.
- [152] Matlis N H, Axley A, Leemans W P. Single-shot ultrafast tomographic imaging by spectral multiplexing [J]. *Nature Communications*, 2012, 3: 1111.
- [153] Nemoto H, Suzuki T, Yamaguchi Y, et al. Single-shot ultrafast burst imaging by spectrally sweeping pulse train with 100-ps interval [C] // CLEO Pacific Rim Conference, July 29-August 3, 2018, Hong Kong, China. Washington, D. C.: OSA, 2018: Th1B. 3.
- [154] Suzuki T, Isa F, Fujii L, et al. All-optical single-shot ultrafast 2D-burst imaging using a linearly frequency chirped pulse [C] // 2015 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR), August 24-28, 2015, Busan, Korea (South). New York: IEEE Press, 2015.
- [155] Chini M, Zhao K, Chang Z. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(3): 178-186.
- [156] James S, David E. *Vacuum ultraviolet spectroscopy* [M]. Salt Lake City: Academic Press, 2000.
- [157] Kosuge A, Sekikawa T, Zhou X, et al. Frequency-resolved optical gating of isolated attosecond pulses

- in the extreme ultraviolet [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 97(26): 263901.
- [158] David A. *Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications* [M]. New York: Cambridge University Press, 2000.
- [159] Orfanos I, Makos I, Lontos I, et al. Attosecond pulse metrology [J]. *APL Photonics*, 2019, 4(8): 080901.
- [160] Tzallas P, Charalambidis D, Papadogiannis N A, et al. Direct observation of attosecond light bunching[J]. *Nature*, 2003, 426(6964): 267-271.
- [161] Hörlein R, Nomura Y, Tzallas P, et al. Temporal characterization of attosecond pulses emitted from solid-density plasmas[J]. *New Journal of Physics*, 2010, 12(4): 043020.
- [162] Nomura Y, Hörlein R, Tzallas P, et al. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas[J]. *Nature Physics*, 2009, 5(2): 124-128.
- [163] Sekikawa T, Kosuge A, Kanai T, et al. Nonlinear optics in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2004, 432(7017): 605-608.
- [164] Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation [J]. *Science*, 2001, 292 (5522): 1689-1692.
- [165] Itatani J, Quéré F, Yudin G L, et al. Attosecond streak camera[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(17): 173903.
- [166] 王向林, 徐鹏, 李捷, 等. 利用自研阿秒条纹相机测得 159 as 孤立阿秒脉冲[J]. *中国激光*, 2020, 47(4): 0415002.
- Wang X L, Xu P, Li J, et al. Isolated attosecond pulse with 159 as duration measured by home built attosecond streaking camera[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(4): 0415002.
- [167] Sansone G, Benedetti E, Calegari F, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses[J]. *Science*, 2006, 314(5798): 443-446.
- [168] Mairesse Y, Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts[J]. *Physical Review A*, 2005, 71: 011401.
- [169] Lewenstein M, Salières P, L’Huillier A. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 1995, 52(6): 4747-4754.
- [170] Dudovich N, Smirnova O, Levesque J, et al. Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses [J]. *Nature Physics*, 2006, 2(11): 781-786.
- [171] Kim K T, Zhang C, Shiner A D, et al. Manipulation of quantum paths for space-time characterization of attosecond pulses [J]. *Nature Physics*, 2013, 9(3): 159-163.
- [172] Chopineau L, Denoed A, Leblanc A, et al. Spatio-temporal characterization of attosecond pulses from plasma mirrors[J]. *Nature Physics*, 2021, 17(8): 968-973.
- [173] Spanner M, Bertrand J B, Villeneuve D M. *In situ* attosecond pulse characterization techniques to measure the electromagnetic phase [J]. *Physical Review A*, 2016, 94(2): 023825.

Research Progress in Spatiotemporal Characterization of Femtosecond Laser Fields

Li Zhengyan^{*}, Men Ting, Tang Weiqi, Hu Yaodan, Tang Haocheng, Yan Mingdong
School of Optical and Electronic Information, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei, China

Significance Femtosecond laser technology has developed considerably in the past decades, promoting the progress of scientific areas such as ultrafast optics, strong field physics, super-resolution imaging, and precision measurement. In a typical femtosecond pump-probe experiment, the evolution dynamics of the microscopic structures of matter is excited and observed with micrometer to nanometer spatial resolutions and femtosecond to attosecond temporal resolutions. For a pump laser pulse, complete characterization of its spatiotemporal field distribution information such as pulse duration, dispersion, and wavefront distortion allows researchers to accurately control the laser-matter interaction process. For a probe pulse, the evolution history of the excited matter’s optical properties is encoded in the spatiotemporal amplitude and phase modulations of the probe pulse. Therefore, it is necessary to develop techniques for the spatiotemporal characterization of femtosecond laser fields in three

dimensions, along two transverse spatial directions and one longitudinal temporal direction.

Conventionally, a series of femtosecond laser-pulse characterization techniques have been developed and most of them focus on measuring the “longitudinal” temporal profile of the laser field. For example, autocorrelation and frequency-resolved optical gating have matured and are widely applied worldwide in ultrafast optics laboratories. Moreover, commercial devices based on these techniques are available in the market. For obtaining the transverse spatial distribution information of a laser pulse, multiple techniques and devices are developed. Laser beam profilers are widely applied by academic and industrial users for transverse spatial intensity profiles of lasers. Phase information or wavefront distribution is obtained using wavefront sensors such as Shack-Hartmann devices. To obtain a three-dimensional spatiotemporal profile of a femtosecond laser field, the results of the longitudinal temporal profile characterization and the beam profile measurements are usually combined.

However, the conventional approach of combining the temporal characterization and spatial measurement results is not appropriate for complicated optical fields. First, with an increase in the peak power of femtosecond laser pulses to the petawatt level, the large-aperture optical elements in the petawatt laser facilities introduce severe spatially and temporally dependent optical field distortions. Such distortions are called the spatiotemporal coupling effect, and they have to be characterized simultaneously in the spatial and temporal domains. Second, complicated optical fields with optical vortices or structured polarization have attracted increasing attention of researchers in recent years and require advanced spatiotemporal characterization techniques. Third, some laser-driven short-wavelength light sources such as high harmonic radiations have spatiotemporal coupling nature. A complete characterization of their spatiotemporal profile enables studies on strong field physics in attosecond time scales.

Therefore, this paper aims at reviewing the recent progress in the spatiotemporal femtosecond laser-field characterization techniques, especially emphasizing their capability of simultaneously revolving two-dimensional spatial information and one-dimensional temporal information.

Progress This paper is organized as follows. After a brief introduction in the first section, the second section reviews the techniques used to measure femtosecond laser pulses in the longitudinal time domain, as the traditional time-domain measurement techniques form the fundamentals of spatiotemporally resolved measurement techniques developed in recent years. According to the mechanism of the interaction between the pulse to be measured and the reference pulse in the time domain, the time-domain femtosecond laser-pulse measurement techniques are divided into three categories: intensity autocorrelation-based measurement (Fig. 1), frequency-domain interferometry-based measurement (Fig. 2), and phase modulation-based measurement (Fig. 3).

The third section is the most important part of this paper, which reviews the development of the spatiotemporally resolved femtosecond laser-field characterization techniques. We first discuss the applications of imaging spectrometers in different femtosecond laser spatiotemporal characterization techniques (Fig. 4). As the time-domain information is obtained from the spectral measurement, imaging spectrometers provide additional spatially resolved information simultaneously along the entrance slit direction. However, the entrance slit also blocks the light distributed along the direction perpendicular to it; therefore, almost all pulse spatiotemporal measurement techniques based on imaging spectrometers provide only one-dimensional lateral spatial information or two-dimensional spatial information by scanning the entrance position of the laser field on the slit in an unstable time-consuming way. Specific technologies include SEA-SPIDER, SRSI-ETE, and CROAK.

Alternative methods other than imaging spectrometers have been explored to measure the spectrum of the incident laser field. The related techniques are divided into two categories: multispectral and hyperspectral imaging methods. In multispectral imaging methods such as STRIPED-FISH and HAMSTER, a few spectral components of the incident femtosecond laser pulse are imaged and measured and the full spectrum is obtained through an interpolation scheme if the laser-pulse spectrum is simple. Figure 5 shows the principles and the experimental setup of the STRIPED-FISH technique as a typical multispectral imaging technique, and previous experimental results are shown. When the incident laser field has a complex spectral structure, hyperspectral imaging methods should be applied to resolve fine structures of the spectrum. Figure 6 shows the details of the typical hyperspectral imaging techniques, TERMITES and its derivative INSIGHTS, which adopt the principles of spatially resolved Fourier transform spectroscopy and measure the three-dimensional spatiotemporal amplitude and phase distributions of a femtosecond laser field in multiple shots. However, single-shot three-dimensional characterization of an optical field is still challenging.

Finally, we have briefly reviewed some techniques to determine the spatiotemporal coupling effect of a

femtosecond laser pulse without obtaining the three-dimensional optical field distribution. These techniques are effective and simple in optical configurations, which are especially useful for pulse characterization of petawatt laser pulses in large laser facilities.

Conclusions and Prospects We expect to solve three problems in the near future. First, although the TERMITES and INSIGHT techniques can resolve the three-dimensional optical field information of a femtosecond laser pulse, single-shot measurement is yet to be achieved. Because of the development of the compressive sensing principle, an optical compressed imaging technique called CASSI (Fig. 7) provides a new idea of hyperspectrally measuring the spatial distribution of each spectral component in a single shot. However, CASSI can only obtain the intensity information of a laser pulse, leaving the phase distribution unknown. Based on CASSI, we have also proposed two global three-dimensional phase retrieval schemes, and we expect that the three-dimensional optical field distribution of an arbitrary femtosecond laser field should be determined in a single shot. Preliminary experimental results have justified our proposals.

Second, the application of spatiotemporal pulse characterization in ultrafast pump-probe experiments has been proposed. The evolution information of the optical properties of the pump laser-excited matter is encoded in the amplitude and phase modulations of the probe laser pulse; thus, a thorough characterization of the probe pulse reveals the dynamics of the femtosecond laser-matter interaction. So far, most of the probe characterization techniques are the multispectral imaging techniques, such as the STAMP and FINOPA techniques (Fig. 8), realizing the temporal resolving capability by linearly mapping the chirped probe spectral components to different time delays.

Finally, we have extended the femtosecond laser characterization techniques to the measurement of high harmonic generation. High harmonic generation is a type of laser-like coherent light source in the extreme ultraviolet or soft X-ray spectral range with small divergence, excellent spatial and temporal coherence, high brightness, and femtosecond or attosecond pulse duration. After reviewing the spatially integrated time-domain measurement techniques such as autocorrelation, RABBITT, and CRAB (or attosecond streaking camera), we have discussed the *in situ* measurement techniques for obtaining the spatiotemporal information of high harmonic radiation or isolated attosecond pulses (Fig. 9).

Key words measurement; femtosecond light field; spatiotemporal resolution; pump-probe experiment; single-shot measurement