

## 光学学报

## 基于超表面的超短脉冲时空调控(特邀)

陈璐<sup>1\*\*\*</sup>, 何明杰<sup>2</sup>, 吴强<sup>1,2\*\*</sup>, 许京军<sup>1,2\*</sup><sup>1</sup>南开大学物理科学学院, 天津 300071;<sup>2</sup>南开大学泰达应用物理研究院, 天津 300457

**摘要** 光学超表面作为一种二维人工纳米材料,以其在亚波长尺度上对于光场的多维调控能力,以及易加工、可集成、高损伤阈值等优势,在超短脉冲调控领域展现出了巨大的应用潜力。综述了基于超表面的超短脉冲时域调控和时空域调控最新研究进展,重点介绍了利用傅里叶合成实现按需定制超短脉冲四维时空形貌的调控技术,并对基于超表面的光场时空调控技术的发展进行了展望。

**关键词** 光场调控; 脉冲整形; 超表面; 时空调控; 傅里叶合成

**中图分类号** O436 **文献标志码** A

**DOI:** 10.3788/AOS240670

## 1 引言

## 1.1 超短脉冲

在光学中,超短脉冲通常指持续时间为皮秒( $10^{-12}$  s)到飞秒( $10^{-15}$  s)或更小量级的脉冲,其光谱覆盖范围较宽(如飞秒脉冲的波长可覆盖几十到几百纳米)且频率分布呈等间隔的“梳齿”状(光学频率梳,简称光频梳)。另外,超短脉冲具有非常高的峰值功率,可以达到吉瓦( $10^9$  W)甚至拍瓦( $10^{12}$  W)量级。自 20 世纪 70 年代开始,基于超短脉冲的超快光学发展迅速,在物理<sup>[1-2]</sup>、化学<sup>[3-4]</sup>、生物<sup>[5-6]</sup>、医学<sup>[7-8]</sup>等众多领域都发挥着重要作用。超短脉冲的超高时间分辨率,为观察和分析极短时间尺度内的原子分子动力学过程(如能级跃迁、分子振动等)提供了可能,极大地推动了基础科学的进步<sup>[9-11]</sup>。在计量和检测领域,超短脉冲的宽光谱和光频梳特性被广泛应用于精密频标计量、光谱检测以及超快测距等<sup>[12-14]</sup>。而在材料领域,超短脉冲的高峰值功率可服务于微加工,实现精确切割、刻蚀等操作<sup>[15-17]</sup>。

## 1.2 超短脉冲的调控

超短脉冲的光场调控技术是光学领域发展的一大前沿阵地。目前,光场调控技术主要聚焦于三个方面,即空域调控、时域调控以及时空域的联合调控。在空域,通过调控光场的振幅、相位以及偏振态的空间分布,可生成具有特定空间结构的光场<sup>[18-22]</sup>。在时域的

傅里叶变换系统将组成脉冲光的频率成分在空间上进行展开,通过控制不同频率成分的振幅、相位以及偏振态,实现对出射脉冲时域波形的调控<sup>[23-25]</sup>。而时空域光场调控技术是通过耦合或同时独立地调控光场在时域和空域的属性,生成具有特定时空结构光波包的新型光场调控技术<sup>[26-28]</sup>,该技术有望突破传统光场的时空分布限制,在超快时间尺度上的分子操控<sup>[29-30]</sup>和拓扑激发<sup>[31-32]</sup>,以及极紫外<sup>[33-34]</sup>和 X 射线光场调控<sup>[35-36]</sup>等领域具有重要的应用价值。

光场时空调控与脉冲整形一样,通常需要通过傅里叶变换装置实现超精细调控能力。傅里叶变换装置是一种光学  $4f$  系统( $f$  为焦距),其基本原理是:一束入射脉冲首先通过光栅或其他光谱分散装置,将脉冲中不同波长的光以不同角度发散,再通过透镜或其他聚焦元件将分散的光谱成分会聚到透镜焦面(又称为傅里叶平面),通过在傅里叶平面上嵌入调控装置实现对不同频率的调制,调制后的频率成分经傅里叶逆变换(如使用第二个透镜和光栅的组合)重新组合,可得到经过整形的输出脉冲。基于傅里叶变换的脉冲光场调控技术的关键是位于傅里叶平面的调控装置,通常选用空间光调制器。空间光调制器是一类在空间中控制光的偏振、相位或振幅的光学设备,是由许多独立单元组成的一维或二维阵列,独立单元可以单独接受光信号或电信号的控制,以实现透射或反射光的精确调制<sup>[37]</sup>。常见的空间光调制器包括基于液晶的空间光调制器(LC-SLM)、声光调制器(AOM)、数字微镜器

收稿日期: 2024-02-29; 修回日期: 2024-04-02; 录用日期: 2024-04-07; 网络首发日期: 2024-04-17

基金项目: 国家自然科学基金(12304362)、国际科技合作基地及 111 引智基地(B23045)、中央高校基本科研业务费(010-63233004)

通信作者: \*jjxu@nankai.edu.cn; \*\*wuqiang@nankai.edu.cn; \*\*\*lchen@nankai.edu.cn

(DMD)等。LC-SLM是光场调控最常见的调控装置之一,其工作原理主要是基于液晶分子的双折射性质来实现入射光不同偏振分量的相位调制:对于o光,其偏振方向垂直于液晶分子长轴,在没有电场作用时,它在液晶中的传播不会受到液晶分子排列的影响,折射率不发生变化;对于e光,其偏振方向平行于液晶分子长轴,在液晶中传播时会受到液晶分子排列的影响,折射率随液晶分子的排列方向而改变<sup>[38-40]</sup>。LC-SLM具有线性度好、可编程性强等优势,但对入射光的偏振态有一定的要求且工作波段通常为可见光及以上的长波长波段。AOM是一种通过声光效应实现调控作用的光学器件,通过在介质中传导的声波周期性地改变介质折射率,进而使入射光发生衍射,完成调控<sup>[41-43]</sup>。AOM的响应非常迅速,且通常具有较高的调制效率,但其对偏振敏感,只能作用于特定偏振态的入射光。DMD是一种基于微电子机械系统技术的光学器件,由能够独立控制的微小镜面阵列组成,通过微型电路产生的电信号,控制微镜的不同翻转状态,以实现反射光的调控<sup>[44-46]</sup>。DMD的工作波段较广,但缺乏对偏振态的调控。脉冲光场调控技术的发展在很大程度上得益于LC-SLM、AOM和DMD等调控装置的发展,然而这些装置一方面体积通常较大,另一方面受限于

调控单元尺寸(通常在微米量级)以及有限的多维调控能力,其在小型化、超精细光场四维时空调控方面的应用受到限制。超表面作为一种新型的光场调制器件,在超短脉冲调控中展现了巨大的潜力。

### 1.3 超表面

超表面是一种能够在亚波长尺度上调控电磁波的二维人工纳米材料,近年来被广泛应用于光场空间调控<sup>[47-66]</sup>。2011年Capasso课题组<sup>[67]</sup>利用对构成超表面的V型金属纳米单元结构的设计和排布实现了控制光场的空间相位梯度,将传统斯涅尔定律拓展到了广义斯涅尔定律,展示了超表面作为人工微结构区别于天然材料的卓越调控能力。但金属超表面存在较大的欧姆损耗,难以实现高效率的光场调控,这限制了其在很多实际场景中的应用。近年来,具有低吸收、高折射率特性的介质材料被越来越多地应用于超表面的设计和加工,并实现了如消色差超透镜<sup>[68-74]</sup>、全息成像<sup>[75-82]</sup>、偏振检测<sup>[83-86]</sup>等诸多空域光场调控功能。除了可以大幅拓展对电磁波的调控能力,超表面还有着诸多优势:超表面的二维平面结构降低了加工难度,加工工艺还可以与CMOS工艺兼容;同时,作为二维微结构,超表面具有体积小、质量轻等优势,有望成为集便携性、稳定性和扩展性于一体的理想应用平台。表1中对比了在

表1 基于液晶的空间光调制器和超表面的调控特性对比  
Table 1 Shaping characteristic comparison of liquid crystal based SLM and metasurface

Structure	Liquid crystal based SLM	Metasurface
Dynamic control	Programmable	Typically passive, but can be actively tuned with external electrical, optical, mechanical, or thermal stimuli
Spatial resolution	Micrometer-scale	Nanometer-scale
Phase only	Single-layer; optical axis at 0°; output is $\exp(i\alpha) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$ , $\alpha$ is effective retardation phase	Single-layer square nanopillars; arbitrary orientation; output is $\exp(i\varphi) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$ , $\varphi$ is propagation phase
Polarization and phase	Non-independent, single-layer; optical axis at 45°; output is $\exp\left(i\frac{\alpha}{2}\right) \begin{bmatrix} \cos\frac{\alpha}{2} \\ i\sin\frac{\alpha}{2} \end{bmatrix}$	Independent; double-layer (layers A and B); optical axes are A at 45° and B at -45°; output is $\exp\left(i\frac{\alpha_A + \alpha_B}{2}\right) \begin{bmatrix} \cos\frac{\alpha_A - \alpha_B}{2} \\ i\sin\frac{\alpha_A - \alpha_B}{2} \end{bmatrix}$ , $\alpha_A$ and $\alpha_B$ are the effective retardation phase for layer A and B, respectively
Amplitude and phase	Independent; single-layer but 2D array; add a grating function in y-axis	Independent; single-layer rectangular nanopillars; axis is oriented at $\theta$ ; output is $\begin{bmatrix} \exp(i\varphi_1)\cos^2\theta + \exp(i\varphi_2)\sin^2\theta \\ [\exp(i\varphi_1) - \exp(i\varphi_2)]\cos\theta\sin\theta \end{bmatrix}$ , $\varphi_1$ and $\varphi_2$ are the propagation phase along the two birefringent axes of the nanopillar, respectively

光场调控中具有重要应用的基于液晶的空间光调制器和超表面在动态可调性、空间分辨率,以及在傅里叶平面实现对入射脉冲[水平偏振,偏振态为 $(1\ 0)^T$ ]相位、偏振和相位、振幅和相位调控功能的最低要求。

以下将分三部分对基于超表面的超短脉冲时空调控最新进展展开讨论。第 1 部分简述将超表面应用于光场时域调控的方法和原理,并举例说明通过对超表面调控函数的设计,实现按需调控超短脉冲的相位、振幅以及偏振态时域波形;第 2 部分介绍利用超表面实现对超短脉冲时域和空域属性同时独立调控的方法和原理,以及对调控后的复杂脉冲的完整四维时空表征技术,并以 3 种具有特定时空结构的超短脉冲为例,详细阐述基于超表面的脉冲光场时空调控具体过程;第 3 部分将概述其他基于超表面的光场时空调控方法。最后进行总结及展望。

## 2 基于超表面的超短脉冲时域调控

### 2.1 超短脉冲相位调控

图 1(a)为基于电介质超表面的傅里叶脉冲整形系统,该系统能够对脉宽仅为 10 fs(对应波长范围覆盖 700~900 nm 的超宽谱宽)的超短近红外脉冲实现

精确按需调控。输入脉冲首先通过光栅对所包含光谱成分的传播角度进行分散,再经过离轴抛物面镜使不同波长的光聚焦到抛物面镜的焦平面,这一过程等效于将输入脉冲的时域波形 $f(t)$ 转换为傅里叶平面上的复频谱形式 $F(\omega)$ ,其中 $t$ 为时间, $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$ 为频率( $c$ 为光速, $\lambda$ 为波长)。电介质超表面被固定在焦平面中,整个超表面样品被划分成 $N$ 个独立设计的“超像素” $S_1$ 至 $S_N$ ,每个超像素独立控制一小组脉冲频率成分。这里需要注意的是,基于傅里叶脉冲整形系统的脉冲调控技术对于入射脉冲的理论极限调控能力由时间带宽乘积决定<sup>[87]</sup>。随着傅里叶平面上光谱分辨率的提升(如通过使用更高线密度的光栅,并搭配更小焦距的离轴抛物面镜;或将光谱进行二维展开),可独立设计的“超像素”数量 $N$ 增加,对出射脉冲可独立加载的调控信息也增加。经过超表面调制的透射光再通过第二个离轴抛物面镜和光栅,重新合束并相干叠加为出射脉冲。超表面调控单元中主要起到调控作用的是亚波长结构的纳米柱,如图 1(b)和(c)所示,其中 $xyz$ 为直角坐标系,通过设计每个超像素 $S_k$ ( $k$ 为像素序号)内纳米柱的平面尺寸 $L_{x,k}$ 和 $L_{y,k}$ 以及纳米柱的转角 $\theta_k$ ,实现对透射光的不同调控函数。

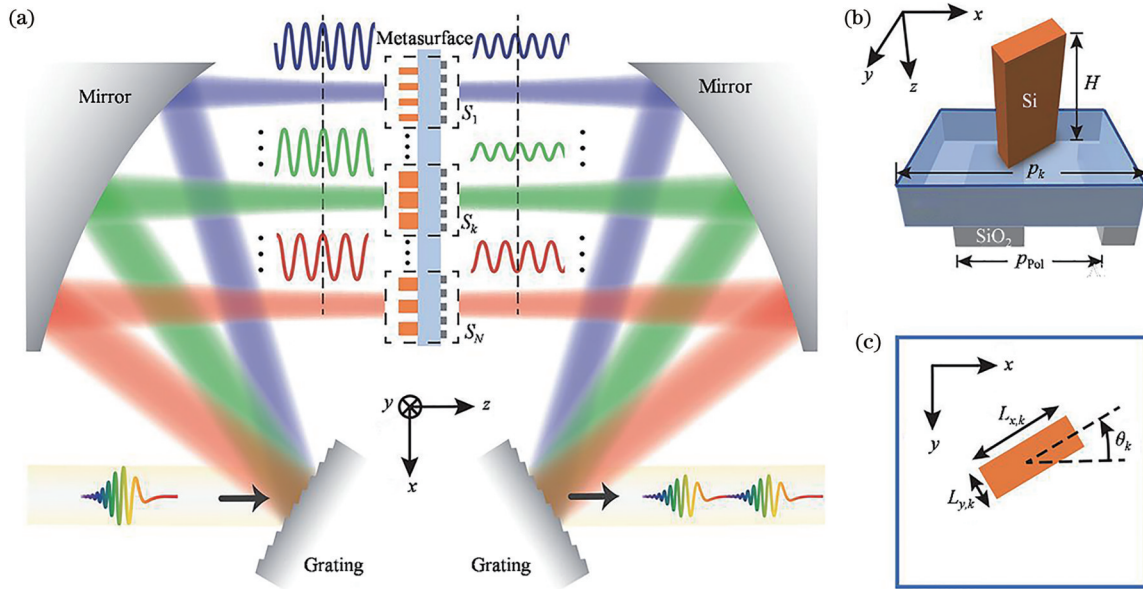


图 1 基于电介质超表面的傅里叶脉冲调控<sup>[88]</sup>。(a) 脉冲调控系统示意图;超像素 $S_k$ 内纳米柱的(b)侧视和(c)俯视示意图  
Fig. 1 Fourier pulse shaping using a dielectric metasurface<sup>[88]</sup>. (a) Schematic of pulse-shaping system; (b) side view and (c) top view of a unit nanopillar inside superpixel  $S_k$ , respectively

以脉冲压缩为例,可通过超表面实现相位调控,补偿超短脉冲传播过程中积累的色散,将在时间上展宽的脉冲重新压缩回变换极限脉冲。因介质对不同频率光的折射率不同,具有宽光谱特性的超短脉冲在传播过程中会经历色散效应,导致脉冲波形在时间上出现展宽和畸变,这严重影响脉冲形貌和峰值功率,因此脉冲压缩被广泛应用于超快光学研究,具有非常重要的

意义。对于一束频谱为 $F_{in}(\omega)$ 的输入脉冲 $f_{in}(t)$ ,在通过一个色散介质后,不同频率积累不同相位 $\varphi(\omega)$ ,则输出脉冲为

$$f_{out}(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega F_{in}(\omega) \exp\{i[\omega t + \varphi(\omega)]\}, \quad (1)$$

式中 $\varphi(\omega)$ 可用泰勒级数展开,可表示为

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \frac{\partial\varphi}{\partial\omega}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2\varphi}{\partial\omega^2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \frac{\partial^3\varphi}{\partial\omega^3}(\omega - \omega_0)^3 + \dots, \quad (2)$$

式中： $\omega_0$  为脉冲中心波长  $\lambda_0$  处的频率， $\omega_0 = \frac{2\pi c}{\lambda_0}$ ； $\frac{\partial^2\varphi}{\partial\omega^2}$  和  $\frac{\partial^3\varphi}{\partial\omega^3}$  又被称为二阶色散和三阶色散<sup>[89]</sup>。

脉冲的时域展宽主要受二阶色散的影响，利用在傅里叶平面上加入一个仅对脉冲频率成分相位进行调控的超表面可实现对二阶色散的补偿。纯相位调控超表面可将超像素  $S_k$  内纳米柱的几何尺寸设置为  $L_{x,k} = L_{y,k} = L_k$ ，通过严格耦合波分析(RCWA)<sup>[90]</sup>方法模拟不同尺寸纳米柱对于光场的调控，并形成纳米柱设计的参数库。以一个通过了 5 mm 厚玻璃板的超短脉冲为例，原脉冲的变换极限脉宽为 10 fs，经过 5 mm 厚的

玻璃板后，脉冲积累的二阶色散相位  $\varphi_{in}(\lambda)$  如图 2(a) 中虚线所示，脉宽相应地从 10 fs 展宽至约 73 fs，如图 2(b) 中虚线所示。 $\varphi_{in}(\lambda)$  可通过设计并加工一个具有  $\varphi^{\text{II}}(\lambda) = -\varphi_{in}(\lambda)$  的相位调控函数的超表面来补偿。设  $\varphi^{\text{II}}(\lambda) = \beta^{\text{II}}[\omega(\lambda) - \omega_0]^2$ ，利用最小二乘法拟合得到加权系数  $\beta^{\text{II}} = -150 \text{ fs}^2 \cdot \text{rad}^{-1}$ ，即图 2(a) 中实线+三角所示。通过在纳米柱参数库中选取最符合  $\varphi^{\text{II}}(\lambda)$  的纳米柱尺寸，如图 2(c) 所示，得到超表面每个超像素内纳米柱的设计，然后利用微纳加工实现相应的超表面结构。经基于超表面的脉冲整形器色散补偿后，实验测量的输出脉冲频域相位和时域强度波形均与目标波形一致，如图 2(a)、(b) 中实线+圆点和实线所示，二阶色散得到了良好的补偿，压缩后的脉宽约为  $(10.6 \pm 0.3) \text{ fs}$ ，符合变换极限脉宽。这很好地证明了基于超表面的脉冲整形系统可以有效实现对超短脉冲相位的按需调控。

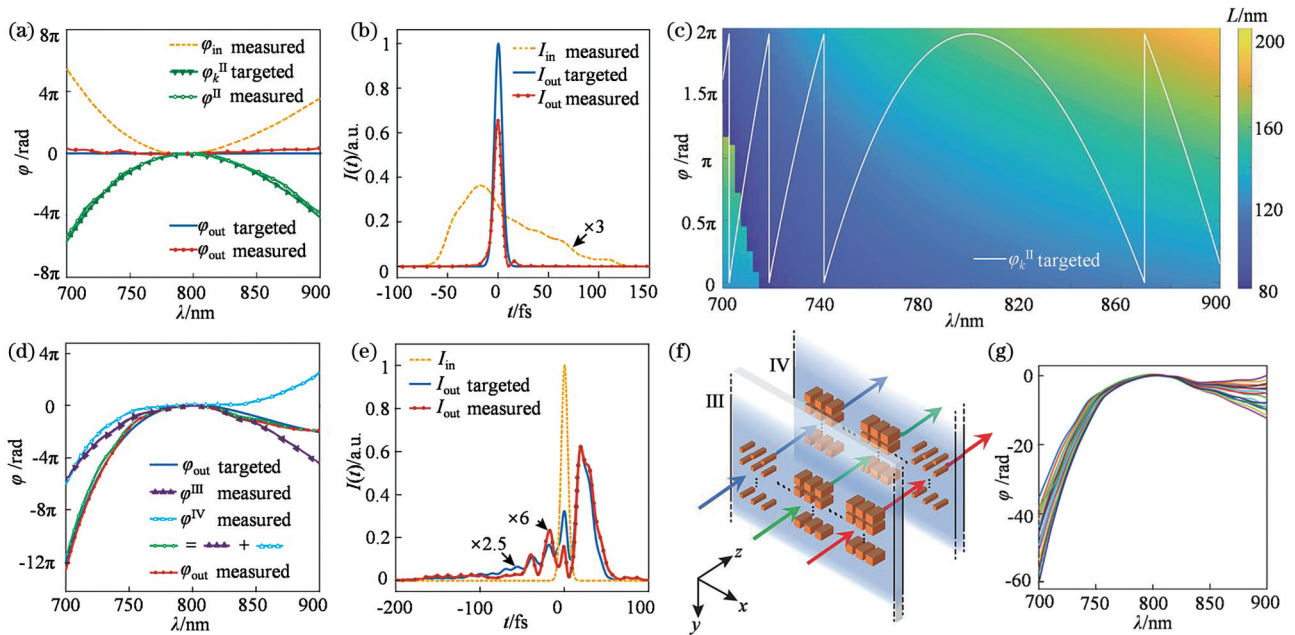


图 2 基于超表面的超短脉冲相位调控<sup>[88]</sup>。利用超表面实现脉冲压缩的(a)光谱相位和(b)时域强度；(c)在 RCWA 方法计算得到的纳米柱库内选取符合设计要求的纳米柱几何尺寸；基于超表面进行高阶相位调控得到的(d)光谱相位和(e)时域强度；(f)基于超表面实现的三阶多项式相位函数调控示意图；(g)通过级联超表面得到的 16 个可调光谱相位变化函数

Fig. 2 Phase control of ultrafast pulses enabled by metasurfaces<sup>[88]</sup>. (a) Spectral phase and (b) temporal intensity plots for metasurface-enabled pulse compression; (c) selecting geometric dimensions of nanopillars meeting design requirements from nanopillar library calculated by RCWA; (d) spectral phase and (e) temporal intensity plots for metasurface-enabled higher-order phase modulation; (f) schematic of implementing third-order polynomial phase function modulation using metasurfaces; (g) spectral phase shift functions available through cascading metasurfaces with 16 possible combinations

在通过补偿二阶色散控制出射脉冲时域宽度的基础上，单个超表面还可同时提供三阶以及高阶色散调控，从而进一步控制脉冲的时域形貌，对于超短脉冲三阶及高阶色散的补偿也被广泛应用于量子相干控制<sup>[91]</sup>等领域。如图 2(d) 和 2(e) 所示，同一块超表面样品可同时赋予入射超短脉冲一个二阶色散函数  $\beta^{\text{III}}[\omega(\lambda) - \omega_0]^2$  相位调控和一个三阶色散函数  $\beta^{\text{IV}}[\omega(\lambda) - \omega_0]^3$  相

位调控，这里以加权色散系数  $\beta^{\text{III}} = -200 \text{ fs}^2 \cdot \text{rad}^{-1}$  和  $\beta^{\text{IV}} = -400 \text{ fs}^3 \cdot \text{rad}^{-2}$  为例，分析输出脉冲相对于输入脉冲的时域波形产生的拉伸、分散及高阶畸变。而通过在傅里叶平面附近嵌入一系列级联的相位调控超表面，可以实现任意高阶多项式函数的脉冲相位调控。如图 2(f) 所示，第一块超表面样品执行二阶色散函数的相位调控，第二块超表面样品可进一步叠加三阶色

散函数的相位调控,且两块超表面样品均可在  $y$  方向加工具有不同色散系数( $\beta^{\text{III}}$ 与 $\beta^{\text{IV}}$ )的超表面结构,通过在  $y$  方向上下平移两块超表面,可组合实现可调谐的超短脉冲相位调控功能,如图 2(g)所示。

### 2.2 超短脉冲振幅和相位调控

要实现超短脉冲时域标量波形的按需调控,在相位调控的基础上,还需要能够同时且独立地控制超短脉冲所含各频率成分的振幅,即要求位于傅里叶平面的超表面脉冲调控器件可提供复调控函数  $r(\omega)$ :

$$r(\omega) = a(\omega) \exp[i\varphi(\omega)], \quad (3)$$

$$|\mathbf{J}(\omega)\rangle = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos[\theta(\omega)] & -\sin[\theta(\omega)] \\ \sin[\theta(\omega)] & \cos[\theta(\omega)] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp[i\varphi_x(\omega)] & 0 \\ 0 & \exp[i\varphi_y(\omega)] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos[\theta(\omega)] & \sin[\theta(\omega)] \\ -\sin[\theta(\omega)] & \cos[\theta(\omega)] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \exp[i\varphi_x(\omega)] \cos[2\theta(\omega)] \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (4)$$

式中: $\theta$ 为纳米柱的旋转角度; $\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}$ 和 $\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}$ 分别表示入射水平偏振态和水平偏振片,并代入半波片条件 $\varphi_x - \varphi_y = \pm\pi$ 进行简化。由此可知, $a(\omega) = \cos[2\theta(\omega)]$ ,

式中: $a(\omega)$ 和 $\varphi(\omega)$ 分别表示频率为 $\omega$ 的振幅和相位调控函数。 $r(\omega)$ 可由调控单元为矩形纳米柱的超表面并在其基底背面叠加一个线栅偏振器实现,如图 3(a)所示。对于电场沿水平方向振荡的线偏振输入脉冲,通过设计矩形纳米柱的几何尺寸 $L_{x,k}$ 和 $L_{y,k}$ 可使两个相互垂直的出射偏振分量的相位相差 $\varphi_x - \varphi_y = \pm\pi$ ,即纳米柱等效于一个半波片;线栅偏振器可视为一个水平偏振片,将偏振态调控转化为振幅调控。经超表面调控后出射频率 $\omega$ 的偏振态可用琼斯矢量 $|\mathbf{J}(\omega)\rangle$ 表示:

$\varphi(\omega) = \varphi_x(\omega)$ ,通过旋转纳米柱角度 $\theta$ 可调控出射频率成分的振幅,而通过选择适当的纳米柱平面尺寸 $L_x$ 和 $L_y$ 可调控出射频率成分的相位,且相位和振幅的调控是相互独立的,如图 3(b)所示。

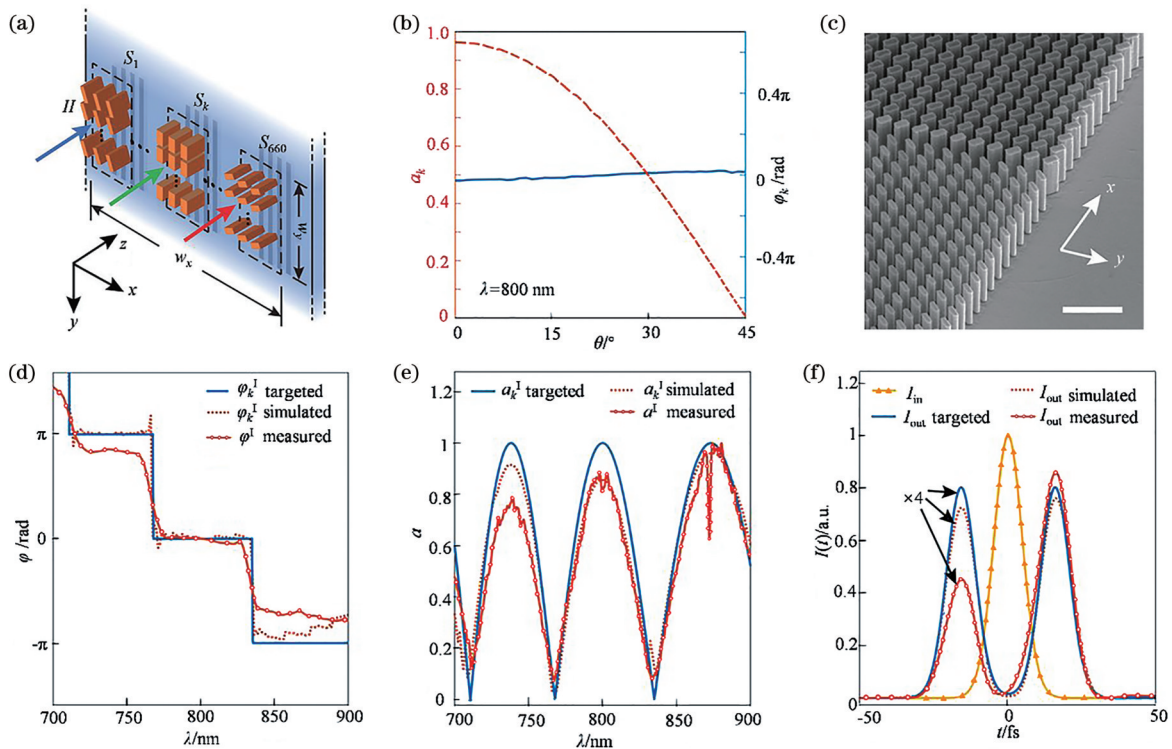


图 3 基于超表面的超短脉冲振幅和相位调控<sup>[88]</sup>。(a)矩形纳米柱阵列示意图;(b)同时且独立的振幅和相位调控;(c)可实现脉冲劈裂的超表面样品 SEM 图,比例尺为  $1 \mu\text{m}$ ;基于超表面实现脉冲劈裂的(d)光谱相位、(e)光谱振幅和(f)时域强度  
Fig. 3 Amplitude and phase control of ultrafast pulses enabled by metasurfaces<sup>[88]</sup>. (a) Schematic of rectangular nanopillar array; (b) simultaneous, independent amplitude and phase control; (c) SEM image of metasurface capable of pulse splitting, scale bar is  $1 \mu\text{m}$ ; (d) spectral phase, (e) spectral amplitude, and (f) temporal intensity plots for metasurface-enabled pulse splitting, respectively

图 3(c)展示了一个可将单个入射超短脉冲分为两个时间间隔为 $\Delta t = 30 \text{ fs}$ 的脉冲串的超表面纳米柱

阵列。要实现这种脉冲时域波形的调控,超表面调控函数可表示为

$$r(\omega) = \cos \frac{\pi(\omega - \omega_0)}{\Delta\omega}, \quad (5)$$

式中:  $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}$  为频率间隔。因此,  $\varphi(\lambda) = \varphi[\omega(\lambda)] = \arg\{r[\omega(\lambda)]\}$  为以  $\pi$  为间距的阶跃函数, 如图 3(d) 所示,  $\pm\pi$  表示  $r(\omega)$  函数数值为负, 0 表示  $r(\omega)$  函数数值为正。  $a(\lambda) = a[\omega(\lambda)] = |r[\omega(\lambda)]|$ , 总为正数, 如图 3(e) 所示。通过在纳米柱参数库中选取最符合  $\varphi(\lambda)$  的纳米柱几何尺寸并考虑  $a(\lambda)$  与  $\theta$  的关系, 可得到每个超像素内纳米柱的设计。如图 3(d)~3(f) 所示, 模拟计算和实际测量得到的超表面对脉冲频率成分的相位、振幅和时域强度与预期结果均较为吻合。通过基于超表面的脉冲调控装置后, 入射脉冲(按 10 fs 高斯脉冲计算)被分成两个间距为  $\Delta t = (30.7 \pm 0.8)$  fs 的出射脉冲。这个例子很好地展示了超表面在脉冲振幅和相位两个标量自由度上的调控能力, 可由此实现

$$\mathbf{r}(\omega_k) = \mathbf{r}[\varphi_x(\omega_k), \varphi_y(\omega_k), \theta(\omega_k)] = \exp(i\varphi_x) \begin{bmatrix} \cos^2\theta + \exp[i(\varphi_y - \varphi_x)] \sin^2\theta & \{1 - \exp[i(\varphi_y - \varphi_x)]\} \cos\theta \sin\theta \\ \{1 - \exp[i(\varphi_y - \varphi_x)]\} \cos\theta \sin\theta & \sin^2\theta + \exp[i(\varphi_y - \varphi_x)] \cos^2\theta \end{bmatrix}, \quad (7)$$

式中:  $\omega_k$  为超像素  $S_k$  内中心波长  $\lambda_k$  对应的角频率。对于每一个  $\theta(\omega_k)$ ,  $\varphi_y(\omega_k) - \varphi_x(\omega_k)$  为两垂直偏振方向之间的相位延迟, 它决定了调控后  $\omega_k$  的偏振态; 矩阵外的指数项对应频谱相位, 决定着不同  $\omega_k$  之间的相对相位关系。

通过巧妙设计超表面调控函数  $\mathbf{r}(\omega)$ , 可在单脉冲内按需定制偏振态随时间的演化。以图 4(a) 中的目标脉冲为例: 此脉冲在负时间延迟内, 瞬时偏振态随时间沿庞加莱球上的经线按逆时针方向演化; 此脉冲在正时间延迟内, 瞬时偏振态反向沿顺时针方向发展。实验上输入脉冲的偏振态为水平线偏振,  $|\mathbf{K}(\omega)\rangle = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$ , 代入式(6)和(7), 可得

$$\mathbf{G}(\omega_k) = \begin{bmatrix} \exp(i\varphi_x) \cos^2\theta + \exp(i\varphi_y) \sin^2\theta \\ [\exp(i\varphi_x) - \exp(i\varphi_y)] \cos\theta \sin\theta \end{bmatrix} F(\omega_k) = \begin{bmatrix} r_{pp}(\omega_k) \\ r_{sp}(\omega_k) \end{bmatrix} F(\omega_k), \quad (8)$$

式中:  $r_{pp}(\omega_k)$  和  $r_{sp}(\omega_k)$  分别表示将输入的 p 偏振转换为输出的 p-和 s-偏振分量的  $\mathbf{r}(\omega)$  调控函数矩阵元素。假设输入脉冲为高斯时间包络, 图 4(a) 中的目标脉冲要求  $r_{pp}(\omega_k) = \cos\left[\frac{b_{\parallel}}{2}(\omega_k - \omega_0)^2\right]$  和  $r_{sp}(\omega_k) = i \sin\left[\frac{b_{\parallel}}{2}(\omega_k - \omega_0)^2\right]$ , 其中  $b_{\parallel}$  表示啁啾。上述要求可通过将每个纳米柱  $\theta(\omega_k)$  设为  $\frac{\pi}{4}$  来实现。将这些条件

对于超短脉冲时域标量波形的按需定制。

### 2.3 超短脉冲偏振态调控

通过同时且独立控制脉冲频谱成分的振幅和相位, 可有效调控超短脉冲在时域上的标量波形, 而光波是矢量场, 进一步控制单脉冲内时域偏振态的演变可极大地拓展超快光学在手性材料与器件方面的应用。对于时域偏振态波形为  $\mathbf{f}(t)$  的入射脉冲, 为了得到所需时域偏振态波形  $\mathbf{g}(t)$  的输出脉冲, 位于傅里叶平面的超表面需提供一个复杂调控函数矩阵  $\mathbf{r}(\omega)$ , 满足

$$\mathbf{G}(\omega) = \mathbf{r}(\omega) F(\omega) |\mathbf{K}(\omega)\rangle, \quad (6)$$

式中:  $\mathbf{G}(\omega) = \mathcal{F}\{\mathbf{g}(t)\}$  和  $\mathbf{F}(\omega) = F(\omega) |\mathbf{K}(\omega)\rangle = \mathcal{F}\{\mathbf{f}(t)\}$  分别代表输出和输入脉冲的频域波形;  $\mathcal{F}\{\cdot\}$  代表傅里叶变换;  $|\mathbf{K}(\omega)\rangle$  是琼斯矢量, 表示每个  $\omega$  的偏振态。超表面复调控函数  $\mathbf{r}(\omega)$  是通过每个超像素  $S_k$  内的矩形纳米柱实现的, 其琼斯矩阵  $\mathbf{r}(\omega_k)$  可表示为

代入式(8), 可将其简化为

$$\mathbf{G}(\omega_k) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \exp(i\varphi_x) + \exp(i\varphi_y) \\ \exp(i\varphi_x) - \exp(i\varphi_y) \end{bmatrix} F(\omega_k), \quad (9)$$

式中:  $\varphi_x(\omega_k) = \frac{b_{\parallel}}{2}(\omega_k - \omega_0)^2$ ,  $\varphi_y(\omega_k) = -\frac{b_{\parallel}}{2}(\omega_k - \omega_0)^2$ , 这里取  $b_{\parallel} = 80 \text{ fs}^2/\text{rad}$ 。

出射脉冲时变偏振态的实验表征可以通过线性的光谱干涉测量(SI)技术<sup>[92]</sup>和非线性的光谱相位相干直接电场重构法(SPIDER)<sup>[93]</sup>测量出射脉冲两偏振分量在频域中的振幅  $a_{p(s)}(\omega)$  和相位  $\varphi_{p(s)}(\omega)$ , 再通过傅里叶逆变换重构时域波形  $E_{p(s)}(t) = A_{p(s)}(t) \exp[i\psi_{p(s)}(t)]$ , 其中  $A_{p(s)}(t)$  和  $\psi_{p(s)}(t)$  分别为 p-(s-)偏振分量的时域振幅和相位。与非线性技术不同, 线性的 SI 技术能够得到  $\varphi_{p(s)}(\omega)$  在频域中泰勒级数展开式[式(2)]中的零阶项, 这对准确测量出射脉冲的瞬时偏振状态来说是至关重要的。由  $E_{p(s)}(t)$  可计算归一化瞬时斯托克斯参数  $I(t)$ 、 $Q(t)$ 、 $U(t)$  和  $V(t)$ , 并将时变偏振态在庞加莱球上表示出来<sup>[94]</sup>。假设载波包络相位为零, 经超短脉冲时变偏振态调控的输出脉冲时域波形  $\mathbf{E}_{\text{out}}(t) = \begin{bmatrix} E_p(t) \\ E_s(t) \end{bmatrix}$  的三维电场图如图 4(b) 所示, 出射脉冲瞬时偏振态按设计随时间呈现从圆偏振到椭圆偏振再到线偏振等一系列演变。在此基础上, 如果在脉冲调控装置后加入一个 1/4 波片, 则可进一步扩展超表面复调控函数  $\mathbf{r}(\omega_k)$ :

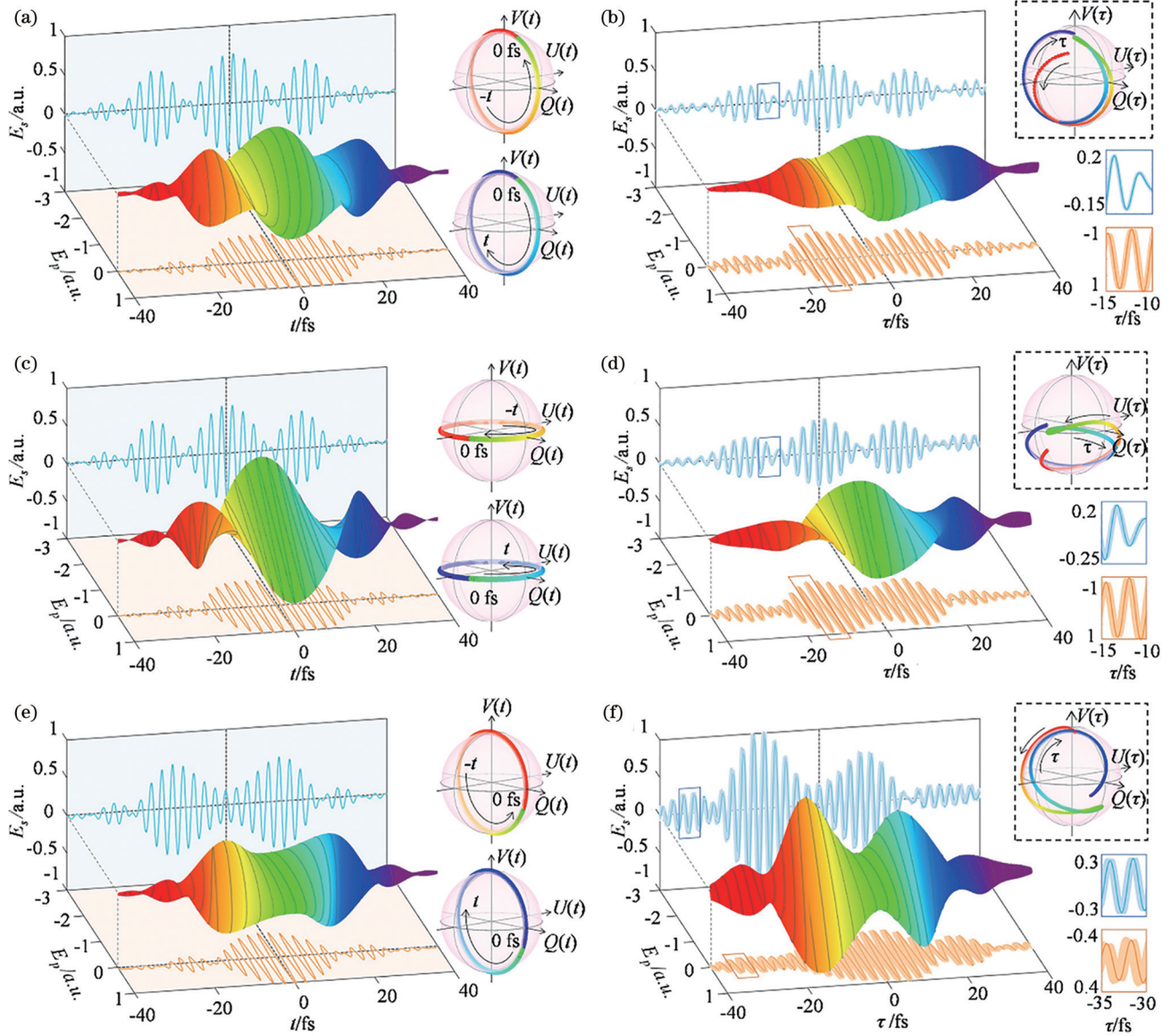


图 4 基于超表面的超短脉冲偏振态调控<sup>[94]</sup>。(a)模拟和(b)实验测量的时变偏振态超短脉冲;1/4波片与x轴方向的夹角为0时的(c)模拟和(d)实验测量的时变偏振态超短脉冲;1/4波片与x轴方向的夹角为π/4时的(e)模拟和(f)实验测量的时变偏振态超短脉冲

Fig. 4 Polarization control of ultrafast pulses enabled by metasurfaces<sup>[94]</sup>. (a) Simulated and (b) measured ultrafast pulses with customized time-varying polarization states; (c) simulated and (d) measured pulses when angle between the 1/4 wave plate and the x-axis is 0; (e) simulated and (f) measured pulses when angle between the 1/4 wave plate and the x-axis is π/4

$$\mathbf{T}^{\text{QWP}}(\omega_k) = \begin{bmatrix} \cos^2\vartheta + i\sin^2\vartheta & (1-i)\sin\vartheta\cos\vartheta \\ (1-i)\sin\vartheta\cos\vartheta & \sin^2\vartheta + i\cos^2\vartheta \end{bmatrix} \mathbf{T}(\omega_k), \quad (10)$$

式中:  $\vartheta$  表示 1/4 波片快轴与 x 轴方向的夹角。如图 4(c)~(f) 所示, 通过改变  $\vartheta$ , 可设计出射脉冲瞬时偏振态沿庞加莱球表面不同轨迹的演变。这些例子展示了超表面结合傅里叶合成可实现按需定制超短脉冲时变偏振态的能力。

### 3 基于超表面的超短脉冲时空调控

在时域调控的基础上, 通过巧妙利用电介质超表面的多维调控能力和高空间分辨率, 可实现对超短脉

冲完整四维时空演化的按需调控, 在超宽带宽(700~900 nm)上合成具有特定时空结构的时空波包(图 5)。如果从光频梳的角度分析超短脉冲串, 即脉冲串是由一系列等间距的谱线组成, 则每条谱线的频率可表示为  $\nu_j = j\nu_{\text{rep}} + \nu_{\text{ceo}}$ , 其中,  $j$  为整数,  $\nu_{\text{rep}}$  为激光的重复频率,  $\nu_{\text{ceo}}$  为载波包络的偏移频率<sup>[13]</sup>。假设输入脉冲的空间及光谱分布均为高斯分布, 偏振态为 p 偏振的输入脉冲的时空电场  $\mathbf{E}_m$  可用傅里叶级数表示为

$$\mathbf{E}_m(x, y, t) = \sum_j E(x)E(y)E(\omega_j, t) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \sum_j \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{\sigma^2}\right) a_j \exp(-i\omega_j t) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (11)$$

式中:  $\sigma$  表示束腰;  $a_j$  表示振幅;  $\omega_j = 2\pi\nu_j$  为角频率;  $E(x)$  和  $E(y)$  分别为光场沿  $x$  和  $y$  方向的空间分布函数;  $E(\omega_j, t)$  为角频率为  $\omega_j$  的光场时间分布函数。如

$$\mathbf{E}_-(\xi, \eta, t) \propto \mathcal{F}\left\{\mathcal{G}\left[\mathbf{E}_{\text{in}}(x, y, t)\right]\right\} = \sum_j u_j(\xi - \xi_j) u_j(\eta) a_j \exp(-i\omega_j t) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (12)$$

式中:  $\mathbf{E}_-(\xi, \eta, t)$  为傅里叶平面中未经超表面调控的入射端电场;  $\mathcal{G}$  代表光栅函数;  $u_j(\xi)$  为输入脉冲在  $\omega_j$  处的一维傅里叶变换;  $\xi_j$  为频率  $\omega_j$  沿  $\xi$  轴的中心位置。

$$\mathbf{E}_+(\xi, \eta, t) = \begin{bmatrix} E_+^p(\xi, \eta, t) \\ E_+^s(\xi, \eta, t) \end{bmatrix} = \mathbf{M}(\xi, \eta) \mathbf{E}_-(\xi, \eta, t) = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix} E_-(\xi, \eta, t) \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_p(\xi, \eta) E_-(\xi, \eta, t) \\ M_s(\xi, \eta) E_-(\xi, \eta, t) \end{bmatrix}, \quad (13)$$

式中:  $E_+^p(\xi, \eta, t)$  和  $E_+^s(\xi, \eta, t)$  分别为 p-和 s-分量经过超表面调制的出射电场;  $M_{11}$ 、 $M_{12}$ 、 $M_{21}$ 、 $M_{22}$  为矩阵  $\mathbf{M}(\xi, \eta)$  中的元素;  $M_p(\xi, \eta)$ 、 $M_s(\xi, \eta)$  分别表示将输入的 p 偏振转换为输出的 p-和 s-偏振分量的  $\mathbf{M}(\xi, \eta)$  调控函数矩阵元素。以  $M_p(\xi, \eta)$  为例, 超表面分为  $Q$  个独立调控的超像素, 每个调控单元  $S_j$  (序号  $J=1, 2, \dots, Q$ ) 能够实现落在  $S_j$  内的脉冲光谱成分同时提供一个光谱调控函数  $r_j^p(\omega_j)$  和一个空间调控函数  $\Gamma_j^p(\xi - \xi_j, \eta)$ , 其中  $\omega_j$  为  $S_j$  内中心波长  $\lambda_j$  对应的角频率,  $\xi_j$  为  $\omega_j$  沿  $\xi$  轴的中心位置。  $M_p(\xi, \eta)$  可表示为每个  $S_j$  调控函数的集合:

$$M_p(\xi, \eta) = \sum_{j=1}^Q r_j^p(\omega_j) \Gamma_j^p(\xi - \xi_j, \eta) \Pi(\xi - \xi_j), \quad (14)$$

图 5(a) 所示, 在脉冲调控装置的输入端, 输入脉冲经光栅分散后, 再经离轴抛物面镜聚焦在傅里叶平面 ( $\xi\eta$  平面), 输入电场转换为

$$\Pi(\xi) = \begin{cases} 1, & -\frac{D}{2} \leq \xi \leq \frac{D}{2}, \\ 0, & \text{else} \end{cases}, \quad (15)$$

式中:  $\Pi(\xi)$  为定义  $S_j$  边界的矩形函数;  $D$  为  $S_j$  的宽度。经超表面调控并经过离轴抛物面镜和光栅合束后, 最终的输出脉冲可表示为

$$\mathbf{E}_{\text{out}}(x, y, t) = \begin{bmatrix} \sum_{j=1}^Q E_{\text{out},j}^p(t) E_{\text{out},j}^p(x, y) \\ \sum_{j=1}^Q E_{\text{out},j}^s(t) E_{\text{out},j}^s(x, y) \end{bmatrix}, \quad (16)$$

式中:  $E_{\text{out},j}^{p(s)}(t) = a_j r_j^{p(s)}(\omega_j) \exp(-i\omega_j t)$  和  $E_{\text{out},j}^{p(s)}(x, y) = \mathcal{F}^{-1}[\Gamma_j^{p(s)}(\xi, \eta) \Pi(\xi) u_j(\eta)]$  分别展示了对超短脉冲频谱成分  $\omega_j$  同时且独立进行时域和空域调控的能力, 如图 5(b) 所示。

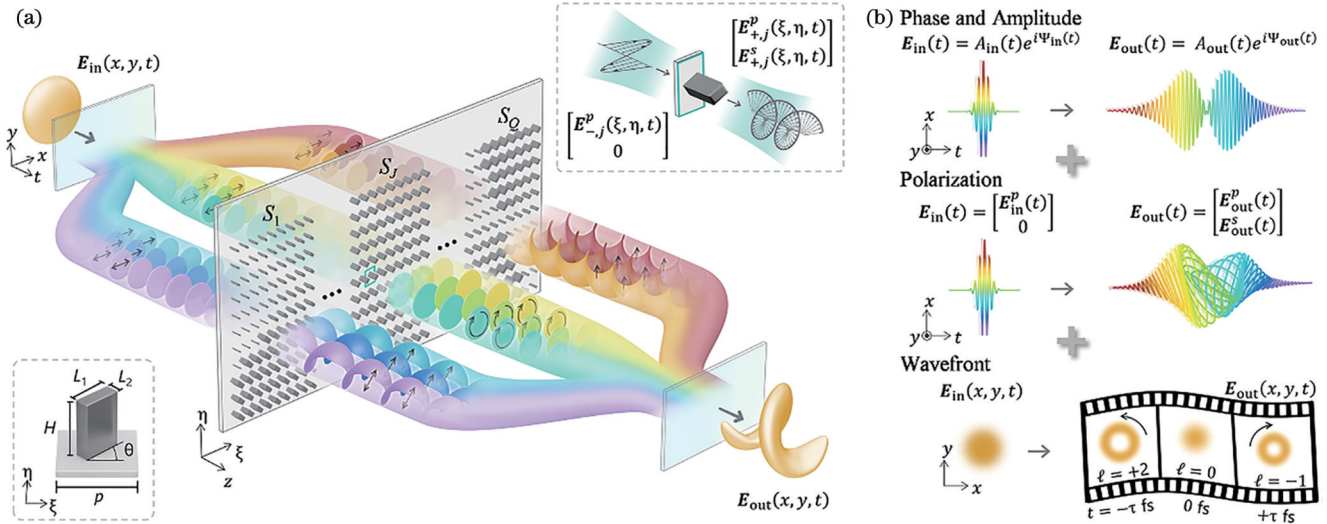


图 5 基于超表面的超短脉冲四维时空调控<sup>[95]</sup>。(a) 时空傅里叶调控装置示意图; (b) 同时且独立的相位、振幅、偏振和空间波前调控  
Fig. 5 Four-dimensional spatiotemporal ultrafast pulse control enabled by metasurface<sup>[95]</sup>. (a) Schematic of spatiotemporal Fourier pulse synthesizer; (b) simultaneous and independent control of phase, amplitude, polarization, and wavefront

图 6 在实验上展示了这种调控方法对超短脉冲在时域和空域的独立调控能力, 该方法在赋予出射脉冲一系列丰富的时变偏振态的同时, 使脉冲的空间波前携带  $\ell = -1$  的轨道角动量。这里, 超表面调控单元的

光谱调控函数设计为

$$r_j^p(\omega_j) = \cos[b_1(\omega_j - \omega_0)] \exp\left[i\frac{b_{11}}{2}(\omega_j - \omega_0)^2\right], \quad (17)$$



$$r_j^s(\omega_j) = i \sin[b_1(\omega_j - \omega_0)] \exp\left[i \frac{b_{11}}{2} (\omega_j - \omega_0)^2\right], \quad (18)$$

式中： $b_{11} = 100 \text{ fs}^2/\text{rad}$ ； $\frac{b_1}{b_{11}} = 0.1 \text{ rad/fs}$  ( $b_{11}$  控制脉冲在时间尺度上的长度， $\frac{b_1}{b_{11}}$  则决定着瞬时偏转主轴的旋转速度)。同时超表面调控单元的空间调控函数设计为  $\Gamma_j^s(\xi - \xi_j, \eta) = \exp\left(i \ell_j \arctan \frac{\eta}{\xi - \xi_j}\right)$ ，其中， $\ell_j = -1$ 。

超短脉冲的完整四维时空表征也是一个实验难

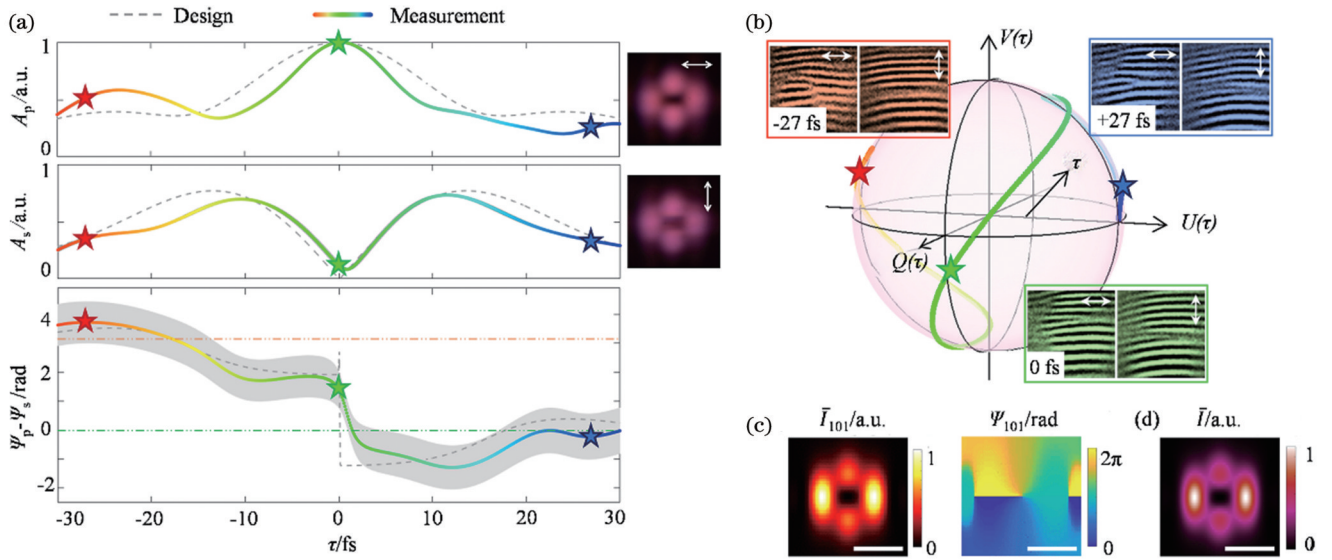


图 6 基于超表面的同时且独立的超短脉冲时域和空域调控<sup>[95]</sup>。(a)具有丰富时变偏振态脉冲的振幅、相位差和强度积分；(b)出射脉冲时变偏振态及干涉条纹；(c)(d)超像素边界效应模拟结果，比例尺为 5 mm

Fig. 6 Independent spatial and temporal control of ultrafast pulses enabled by metasurface<sup>[95]</sup>. (a) Amplitude, phase difference, and integrated intensity of pulse with abundant time-varying polarization states; (b) time-varying polarization states and interferometry images of shaped pulse; (c)(d) simulated superpixel boundary effects (scale bar is 5 mm)

这种通过巧妙设计超表面两级调控函数(光谱调控函数和空间调控函数)实现超短脉冲时空操控的方法,可以为超短脉冲时空结构的设计提供充分的自由度,从而能够以较为简便的方法按需生成各种形式的时空波包,例如具有时空螺旋强度分布的脉冲“光卷”和具有相干多路复用时变轨道角动量的脉冲光(图 7)。这些新型时空波包是通过将特定的轨道角动量级次  $\ell_j$  赋予构成脉冲的不同组频率成分  $\omega_j$  并同时控制这些频率成分的相对相位关系来实现的。实验上,将脉冲频率成分 5 等分,超像素  $S_j$  的调控函数设计为

$$M_j = \exp\left[i \frac{b_{11}}{2} (\omega_j - \omega_0)^2 + i \ell_j \arctan \frac{\eta}{\xi - \xi_j}\right] \Pi(\xi - \xi_j), \quad (19)$$

式中： $\ell_j = 2, 1, 0, -1, -2$ , 分别分配组成脉冲的 5 组频率,如图 7(a)所示。对于“光卷”,设  $b_{11} = 0 \text{ fs}^2/\text{rad}$ ,

点。通过结合一系列频域和空域的干涉测量方法,可以重构出出射脉冲的时空波形演化<sup>[95]</sup>。如图 6(a)和(b)所示,出射脉冲携带随时间快速变化的、极丰富的瞬时偏振态。同时,如图 6(b)中红色、绿色、蓝色五角星所示,出射脉冲在时间  $\tau = -27, 0, 27 \text{ fs}$  处的瞬时空间干涉图像也证实了出射脉冲还携带了轨道角动量为  $\ell = -1$  的涡旋波前。需要指出的是,超表面内超像素的边界可能会对涡旋光产生一定的影响。如图 6(a)所示,  $A_p$  和  $A_s$  曲线图右侧分别为脉冲 p-和 s-偏振分量经时间积分测得的强度分布;如图 6(c)所示,这种影响可以通过减弱超像素的边界效应被减小或消除。

将所有携带不同轨道角动量级次的频率进行相干叠加,生成一个围绕中心传播轴动态旋转的时空波包,如图 7(b)所示;而对于时变轨道角动量脉冲,通过向  $M_j$  内引入啁啾  $b_{11} = 180 \text{ fs}^2/\text{rad}$ ,使携带不同轨道角动量级次的频率在时间上前后分离,合成携带随时间变化的涡旋空间波前的出射脉冲,如图 7(c)所示。除了上述两个时空波包的示例,基于超表面的超短脉冲四维时空调控技术还可通过对复调控函数的按需设计,实现对其他新型时空结构光的定制。

#### 4 基于超表面的实空间超短脉冲时空调控

超短脉冲时空调控领域在过去几年飞速发展,不断涌现出非常优秀的研究成果。其中基于超表面的超短脉冲时空调控,除了可通过将超表面放置于傅里叶平面,也可在实空间中直接调控脉冲的时空形貌。

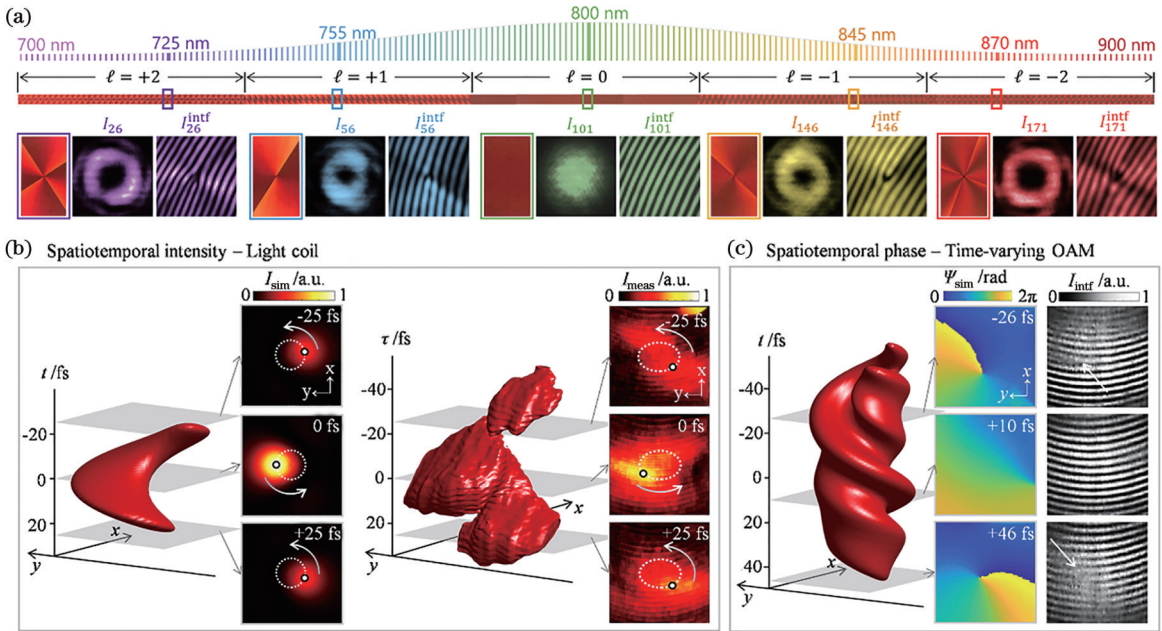


图 7 基于超表面的时空“光卷”和时变轨道角动量脉冲<sup>[95]</sup>。(a)超表面设计原理；(b)时空“光卷”；(c)时变轨道角动量脉冲  
Fig. 7 Metasurface-enabled synthesis of ultrafast “light coil” and spatiotemporal pulse carrying time-varying OAM<sup>[95]</sup>. (a) Design principle of metasurface; (b) spatiotemporal “light coil”; (c) pulse carrying time-varying OAM

Capasso 教授课题组提出了总角动量(TAM)超表面概念(图 8),并实现了在光束传播方向对任意偏振态入射光的自旋角动量(SAM)和轨道角动量(OAM)的独立调控<sup>[96]</sup>。利用类似的工作原理,当超表面可以为超短脉冲的不同频率成分赋予不同的相位和空间波前分布,则透过这种具有特定色散功能的超表面的出射脉冲可以携带一定的、可以被定制的时空结构。例如,使在频域上等间隔分布的一系列频率携带离散的、类似于傅里叶级数的传播模式(如高阶贝塞尔光束),这些频率的相干叠加可生成一束沿传播方向具有不同轨道角动量级次分布的脉冲光,且该脉冲光的时空结构还可以通过改变频率间隔、传播模式来调控。这种不需要傅里叶变换就可以在实空间直接调控的方法简化了脉冲时空调控装置的复杂度,但对入

射频率间隔、纳米柱高度和加工精度等都有限制。通常,超短脉冲的光频梳频率间隔很小,因此需要使用一个法布里-珀罗腔来滤出所需数量的相干光谱线,这影响了出射脉冲的能量和脉冲串重复频率。同时,因为这种方法要求组成超表面的每个纳米柱都可以为不同的频率提供不同的调控函数,纳米柱对不同频率光的相位调控都需要有相位冗余,这往往要求纳米柱有很高的高纵横比以及复杂的结构参数,限制了纳米柱加工的稳定性。因此,利用超表面在实空间实现超短脉冲时空调控仍有一些需要突破的挑战,相关研究仍在进行中。

但是利用超表面已经可以在实空间中实现一定的时空调控函数,例如近年来受到了广泛关注的时空涡旋光(STOV)。通常,光子携带的 OAM 是纵向的,即

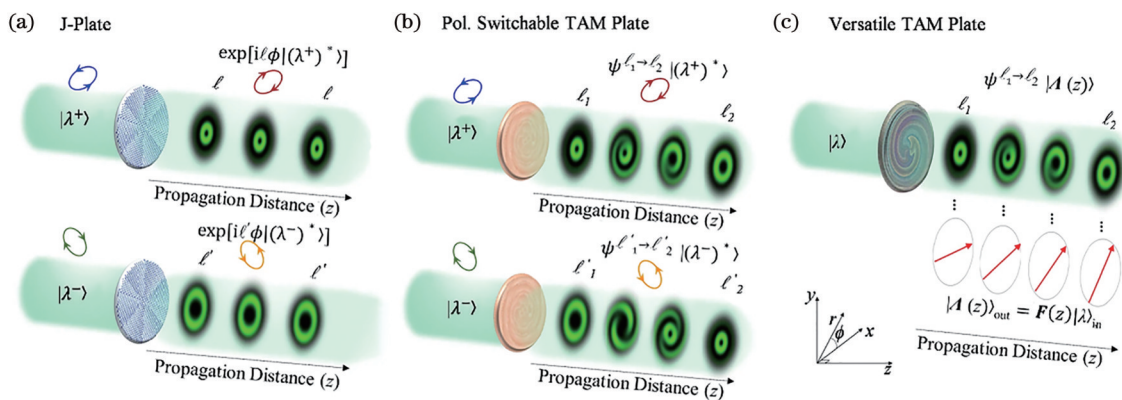


图 8 TAM 超表面<sup>[96]</sup>。(a)传统 J 超表面示意图；(b) TAM 超表面示意图；(c) TAM 超表面应用示意图  
Fig. 8 TAM metasurface<sup>[96]</sup>. (a) Schematic of conventional J-plate metasurface; (b) schematic of TAM metasurface; (c) schematic of application of TAM metasurface

OAM 矢量沿光的传播方向, 而 STOV 可携带矢量方向垂直于光传播方向的横向 OAM。詹其文教授课题组<sup>[97]</sup>和 Milchberg 教授课题组<sup>[98]</sup>分别利用 LC-SLM 和相位板在傅里叶平面上为入射光场叠加涡旋相位, 率先在实验中展示了具有可控 STOV 的时空光场, 如图 9(a) 和 9(b) 所示。另一方面, 这种新型光场也可以

通过超表面在实空间中实现。如图 9(c) 所示, 阮智超教授课题组<sup>[99]</sup>利用打破镜像对称性的超表面时空微分器设计并通过非局域效应, 成功生成了 STOV 光场。光子横向轨道角动量的研究为光与物质的相互作用开创了一个新的角动量自由度, 从而为量子光学、光信息、光计算等众多相关研究领域开辟了全新的道路。

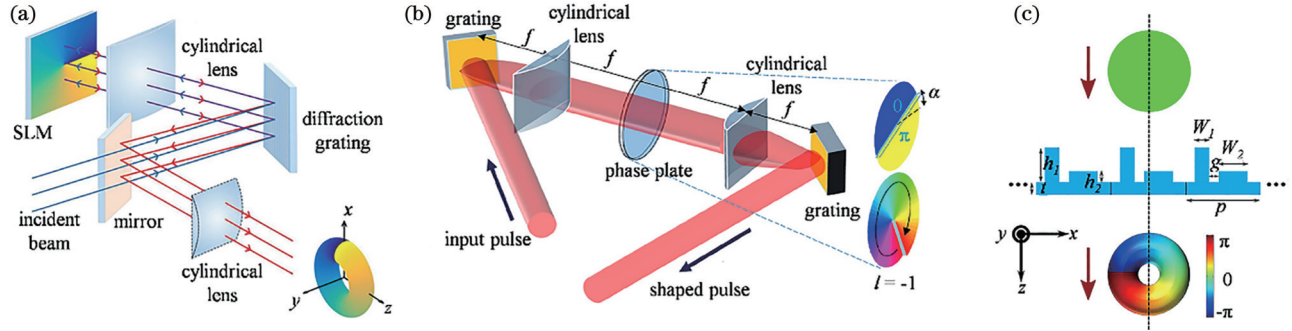


图 9 携带横向轨道角动量的 STOV。利用 (a) LC-SLM 和 (b) 相位板并结合傅里叶合成实现 STOV<sup>[97-98]</sup>; (c) 利用超表面时空微分器在实空间生成 STOV<sup>[99]</sup>  
 Fig. 9 STOV carrying transverse OAM. STOV generated using (a) LC-SLM and (b) phase plate in a Fourier setup<sup>[97-98]</sup>; (c) STOV generation in real space using metasurface spatiotemporal differentiator<sup>[99]</sup>

另一个在实空间中利用超表面直接调控脉冲时空形貌的例子是 Brongersma 教授课题组<sup>[100]</sup>研发的频率梯度超表面, 通过结合频率梳光源和超表面, 实现了在皮秒时间尺度内光的传播方向的连续改变 (图 10)。在这个工作中, 超表面可将入射的脉冲频率成分线性映射到具有不同波矢量的空间光学模式, 而由于入射频率成分之间的相位关系是锁定的, 它们各自的空间模式在时空中相互干涉, 又由于不同频率的相位随时

间演化的速率不同, 最终形成具有特定时空结构的出射光场。这个过程等效于一个具有频率梯度的超表面, 在实验上, 单个频率梯度超表面展示了在 8 ps 内连续偏转激光光束传播方向为 25° 的光场时空调控能力。这种无需任何机械运动元件、仅使用静态超表面就可在极短时间内实现大角度光束动态偏转的技术, 为光学雷达 (LiDAR)、三维成像以及虚拟现实等应用提供了新的选择。

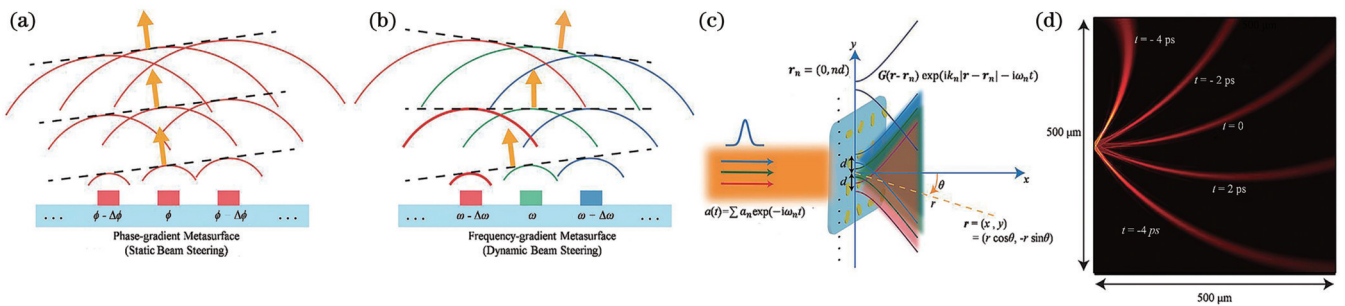


图 10 频率梯度超表面<sup>[100]</sup>。(a) 相位梯度超表面示意图; (b) 频率梯度超表面示意图; (c) 频率梳源和频率梯度超表面间的相互作用示意图; (d) 皮秒时间尺度上实现光线传播方向的动态偏转  
 Fig. 10 Frequency-gradient metasurfaces<sup>[100]</sup>. (a) Schematic of phase-gradient metasurface; (b) schematic of frequency-gradient metasurface; (c) schematic of light-matter interaction between frequency-comb source and frequency-gradient metasurface; (d) dynamic light redirecting within picoseconds

## 5 结束语

超快光学自诞生以来为众多科学研究和技术领域带来了革命性的进展, 随着相关科学和技术的飞速发展, 对于超快光场各自由度按需调控能力的需求也与日俱增。顺应这些需求, 过去十年我们也见证了时空光场调控在设计、合成和表征等方面的诸多创新和进

展, 除本文第 2 至第 4 部分综述的部分新型时空光场外, 具有无衍射传播<sup>[101]</sup>、可调群速度<sup>[102]</sup>、环形拓扑<sup>[103]</sup>、飞行焦点<sup>[104]</sup>等特殊时空结构的超快光场相继涌现。区别于传统光场, 这些新型、特殊甚至极端光场的能量和动量的时空演化可被人为定制, 这为研究及操控超快时间尺度上的光-物质的相互作用提供了前所未有的途径, 也为发现新物理、发展新技术开拓了新的可能。

虽然超短脉冲四维时空调控领域发展迅速,但真正实现任意操控光场在空域和时域所有基本自由度的能力仍面临一些挑战。超高的空间和时间分辨率对于光场调控技术和器件的调控精度、频率分辨率、光谱覆盖范围、多维调控能力等都有着极高的要求。近年来,超高亮度光源<sup>[105-107]</sup>、阿秒光脉冲<sup>[108-109]</sup>等新兴光源的发展也对光场时空调控器件的损伤阈值、工作波段等有了新的要求。研究的深入化和复杂化,对于光场时空调控函数的可调性以及可编程性也将有着越来越多的需求。本文综述了由亚波长纳米结构组成的超表面在塑造光场时空结构方面的突出表现和潜力。超表面光场时空调控新理论模型、新设计概念以及纳米加工技术、光场时空表征技术等不断发展,有望加快推动基于超表面的超短脉冲四维时空调控领域的进展。在短期内,我们期望超表面能提供更多功能的光场时空调控,实现更多可定制的新型时空光场;从长远看,发展兼具便携性、可集成性、可重构性以及可拓展性的按需时空调控技术有望将超短脉冲四维时空调控拓展到更多的研究领域,并推动相关领域的进一步发展。例如,基于液晶的空间光调制器已被应用于锁模激光器中实现多波长同步锁模孤子<sup>[110]</sup>,基于超表面的激光光纤腔也被证实可以产生具有时空轮廓的激光脉冲<sup>[111]</sup>。未来通过将超表面时空调控能力与激光腔相结合,实现直接按需出射具有特定时空结构的高能量脉冲对于研究和控制不同时间尺度的极端物理过程具有重要意义。

## 参 考 文 献

- [1] Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter[J]. *Nature*, 2007, 449(7165): 1029-1032.
- [2] Lloyd-Hughes J, Oppeneer P M, dos Santos T D, et al. The 2021 ultrafast spectroscopic probes of condensed matter roadmap [J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2021, 33(35): 353001.
- [3] Zewail A H. Laser femtochemistry[J]. *Science*, 1988, 242(4886): 1645-1653.
- [4] Nibbering E T J, Fidler H, Pines E. Ultrafast chemistry: using time-resolved vibrational spectroscopy for interrogation of structural dynamics[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2005, 56: 337-367.
- [5] Denk W, Strickler J H, Webb W W. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy[J]. *Science*, 1990, 248(4951): 73-76.
- [6] Sundström V. Femtobiology[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2008, 59: 53-77.
- [7] Dausinger F, Lichtner F, Lubatschowski H. Femtosecond technology for technical and medical applications[M]. Berlin: Springer, 2004.
- [8] Kohli V, Elezzabi A Y, Acker J P. Cell nanosurgery using ultrashort (femtosecond) laser pulses: applications to membrane surgery and cell isolation[J]. *Lasers in Surgery and Medicine*, 2005, 37(3): 227-230.
- [9] Warren W S, Rabitz H, Dahleh M. Coherent control of quantum dynamics: the dream is alive[J]. *Science*, 1993, 259(5101): 1581-1589.
- [10] Siegrist F, Gessner J A, Ossiander M, et al. Light-wave dynamic control of magnetism[J]. *Nature*, 2019, 571(7764): 240-244.
- [11] Guo Z N, Ge P P, Fang Y Q, et al. Probing molecular frame Wigner time delay and electron wavepacket phase structure of CO molecule[J]. *Ultrafast Science*, 2022, 2022: 9802917.
- [12] Metcalf A J, Anderson T, Bender C F, et al. Stellar spectroscopy in the near-infrared with a laser frequency comb[J]. *Optica*, 2019, 6(2): 233-239.
- [13] Picqué N, Hänsch T W. Frequency comb spectroscopy[J]. *Nature Photonics*, 2019, 13: 146-157.
- [14] Diddams S A, Vahala K, Udem T. Optical frequency combs: coherently uniting the electromagnetic spectrum[J]. *Science*, 2020, 369(6501): eaay3676.
- [15] Gan Z S, Cao Y Y, Evans R A, et al. Three-dimensional deep sub-diffraction optical beam lithography with 9 nm feature size [J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2061.
- [16] Ahmed K, Grambow C, Kietzig A M. Fabrication of micro/nano structures on metals by femtosecond laser micromachining [J]. *Micromachines*, 2014, 5(4): 1219-1253.
- [17] Sugioka K, Cheng Y. Femtosecond laser three-dimensional micro- and nanofabrication[J]. *Applied Physics Reviews*, 2014, 1(4): 041303.
- [18] Maurer C, Jesacher A, Bernet S, et al. What spatial light modulators can do for optical microscopy[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2011, 5(1): 81-101.
- [19] Chen Z G, Segev M, Christodoulides D N. Optical spatial solitons: historical overview and recent advances[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2012, 75(8): 086401.
- [20] Rubinsztein-Dunlop H, Forbes A, Berry M V, et al. Roadmap on structured light[J]. *Journal of Optics*, 2017, 19(1): 013001.
- [21] Chen S Q, Li Z C, Liu W W, et al. From single-dimensional to multidimensional manipulation of optical waves with metasurfaces[J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(16): e1802458.
- [22] 潘岳, 丁剑平, 王慧田. 新型矢量光场调控: 简介、进展与应用 [J]. *光学学报*, 2019, 39(1): 0126001.
- [23] Pan Y, Ding J P, Wang H T. Manipulation on novel vector optical fields: introduction, advances and applications[J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(1): 0126001.
- [24] Tull J X, Dugan M A, Warren W S. High-resolution, ultrafast laser pulse shaping and its applications[M]//Advances in magnetic and optical resonance. Amsterdam: Elsevier, 1997.
- [25] Monmayrant A, Weber S, Chatel B. A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2010, 43(10): 103001.
- [26] Weiner A M. Ultrafast optical pulse shaping: a tutorial review[J]. *Optics Communications*, 2011, 284(15): 3669-3692.
- [27] Forbes A, de Oliveira M, Dennis M R. Structured light[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15: 253-262.
- [28] Yessenov M, Hall L A, Schepler K L, et al. Space-time wave packets[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2022, 14(3): 455.
- [29] Shen Y J, Zhan Q W, Wright L G, et al. Roadmap on spatiotemporal light fields[J]. *Journal of Optics*, 2023, 25(9): 093001.
- [30] Padgett M, Bowman R. Tweezers with a twist[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5: 343-348.
- [31] Korobenko A, Milner A A, Hepburn J W, et al. Rotational spectroscopy with an optical centrifuge[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2014, 16(9): 4071-4076.
- [32] McIver J W, Hsieh D, Steinberg H, et al. Control over topological insulator photocurrents with light polarization[J]. *Nature Nanotechnology*, 2011, 7(2): 96-100.
- [33] Dai Y N, Zhou Z K, Ghosh A, et al. Plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales[J]. *Nature*, 2020, 588(7839): 616-619.
- [34] Kong F Q, Zhang C M, Bouchard F, et al. Controlling the

- orbital angular momentum of high harmonic vortices[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14970.
- [34] Rego L, Dorney K M, Brooks N J, et al. Generation of extreme-ultraviolet beams with time-varying orbital angular momentum[J]. *Science*, 2019, 364(6447): eaaw9486.
- [35] Fan T T, Grychtol P, Knut R, et al. Bright circularly polarized soft X-ray high harmonics for X-ray magnetic circular dichroism[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, 112(46): 14206-14211.
- [36] Rego L, Brooks N J, Nguyen Q L D, et al. Necklace-structured high-harmonic generation for low-divergence, soft X-ray harmonic combs with tunable line spacing[J]. *Science Advances*, 2022, 8(5): eabj7380.
- [37] Neff J A, Athale R A, Lee S H. Two-dimensional spatial light modulators: a tutorial[J]. *Proceedings of the IEEE*, 1990, 78(5): 826-855.
- [38] Yang D K, Wu S T. *Fundamentals of liquid crystal devices*[M]. Singapore: John Wiley & Sons Inc., 2014.
- [39] Forbes A, Dudley A, McLaren M. Creation and detection of optical modes with spatial light modulators[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2016, 8(2): 200.
- [40] Collings P J, Goodby J W. *Introduction to liquid crystals: chemistry and physics*[M]. Boca Raton: CRC Press, 2019.
- [41] Tsai C S. *Guided-wave acousto-optics: Interactions, devices, and applications*[M]. Berlin: Springer, 1990.
- [42] Tran C D. Acousto-optic devices[J]. *Analytical Chemistry*, 1992, 64(20): 971A-981A.
- [43] Goutzoulis A P. *Design and fabrication of acousto-optic devices*[M]. Boca Raton: CRC Press, 2021.
- [44] Dudley D, Duncan W M, Slaughter J. Emerging digital micromirror device (DMD) applications[J]. *Proceedings of SPIE*, 2003, 4985: 14-25.
- [45] Ren Y X, Lu R D, Gong L. Tailoring light with a digital micromirror device[J]. *Annalen Der Physik*, 2015, 527(7/8): 447-470.
- [46] Scholes S, Kara R, Pinnell J, et al. Structured light with digital micromirror devices: a guide to best practice[J]. *Optical Engineering*, 2019, 59(4): 041202.
- [47] Kildishev A V, Boltasseva A, Shalaev V M. Planar photonics with metasurfaces[J]. *Science*, 2013, 339(6125): 1232009.
- [48] Yu N F, Capasso F. Flat optics with designer metasurfaces[J]. *Nature Materials*, 2014, 13(2): 139-150.
- [49] Meinzer N, Barnes W L, Hooper I R. Plasmonic meta-atoms and metasurfaces[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(12): 889-898.
- [50] Minovich A E, Miroshnichenko A E, Bykov A Y, et al. Functional and nonlinear optical metasurfaces[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(2): 195-213.
- [51] Chen H T, Taylor A J, Yu N F. A review of metasurfaces: physics and applications[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2016, 79(7): 076401.
- [52] Li G X, Zhang S, Zentgraf T. Nonlinear photonic metasurfaces[J]. *Nature Reviews Materials*, 2017, 2(5): 17010.
- [53] Hsiao H H, Chu C H, Tsai D P. Fundamentals and applications of metasurfaces[J]. *Small Methods*, 2017, 1(4): 1600064.
- [54] Ding F, Pors A, Bozhevolnyi S I. Gradient metasurfaces: a review of fundamentals and applications[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2018, 81(2): 026401.
- [55] Krasnok A, Tymchenko M, Alù A. Nonlinear metasurfaces: a paradigm shift in nonlinear optics[J]. *Materials Today*, 2018, 21(1): 8-21.
- [56] Kamali S M, Arbabi E, Arbabi A, et al. A review of dielectric optical metasurfaces for wavefront control[J]. *Nanophotonics*, 2018, 7(6): 1041-1068.
- [57] He Q, Sun S L, Xiao S Y, et al. High-efficiency metasurfaces: principles, realizations, and applications[J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(19): 1800415.
- [58] Cui T, Bai B F, Sun H B. Tunable metasurfaces based on active materials[J]. *Advanced Functional Materials*, 2019, 29(10): 1806692.
- [59] Huo P C, Zhang S, Liang Y Z, et al. Hyperbolic metamaterials and metasurfaces: fundamentals and applications[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(14): 1801616.
- [60] Kang L, Jenkins R P, Werner D H. Recent progress in active optical metasurfaces[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(14): 1801813.
- [61] Liu Z J, Xu Y, Lin Y, et al. High-Q quasibound states in the continuum for nonlinear metasurfaces[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(25): 253901.
- [62] Zhang S Y, Wong C L, Zeng S W, et al. Metasurfaces for biomedical applications: imaging and sensing from a nanophotonics perspective[J]. *Nanophotonics*, 2020, 10(1): 373.
- [63] Solntsev A S, Agarwal G S, Kivshar Y S. Metasurfaces for quantum photonics[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15: 327-336.
- [64] Yang J Y, Gurung S, Bej S, et al. Active optical metasurfaces: comprehensive review on physics, mechanisms, and prospective applications[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2022, 85(3): 036101.
- [65] 樊鑫豪, 武炫光, 周亮, 等. 基于超表面的阵列光场纵向维度信息编解码[J]. *中国激光*, 2023, 50(18): 1813013.
- Fan X H, Wu X G, Zhou L, et al. Longitudinally encoding and decoding information in light field arrays based on metasurface[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(18): 1813013.
- [66] 王星儿, 许可, 范旭浩, 等. 基于选择性光谱响应结构的横向色散多焦点超透镜[J]. *中国激光*, 2023, 50(18): 1813014.
- Wang X E, Xu K, Fan X H, et al. Transversely dispersive multi-foci metalens based on selective spectral response structure[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(18): 1813014.
- [67] Yu N F, Genevet P, Kats M A, et al. Light propagation with phase discontinuities: generalized laws of reflection and refraction[J]. *Science*, 2011, 334(6054): 333-337.
- [68] Wang S M, Wu P C, Su V C, et al. A broadband achromatic metalens in the visible[J]. *Nature Nanotechnology*, 2018, 13(3): 227-232.
- [69] Shrestha S, Overvig A C, Lu M, et al. Broadband achromatic dielectric metalenses[J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7: 85.
- [70] Fan Z B, Qiu H Y, Zhang H L, et al. A broadband achromatic metalens array for integral imaging in the visible[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 67.
- [71] Chung H, Miller O D. High-NA achromatic metalenses by inverse design[J]. *Optics Express*, 2020, 28(5): 6945-6965.
- [72] Shen Z X, Zhou S H, Li X N, et al. Liquid crystal integrated metalens with tunable chromatic aberration[J]. *Advanced Photonics*, 2020, 2(3): 036002.
- [73] Balli F, Sultan M, Lami S K, et al. A hybrid achromatic metalens[J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 3892.
- [74] Wang Y J, Chen Q M, Yang W H, et al. High-efficiency broadband achromatic metalens for near-IR biological imaging window[J]. *Nature Communications*, 2021, 12: 5560.
- [75] Huang L L, Chen X Z, Mühlenbernd H, et al. Three-dimensional optical holography using a plasmonic metasurface[J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2808.
- [76] Genevet P, Capasso F. Holographic optical metasurfaces: a review of current progress[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2015, 78(2): 024401.
- [77] Wan W W, Gao J, Yang X D. Metasurface holograms for holographic imaging[J]. *Advanced Optical Materials*, 2017, 5(21): 1700541.
- [78] Zhao R Z, Sain B, Wei Q S, et al. Multichannel vectorial holographic display and encryption[J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7: 95.
- [79] Ren H R, Briere G, Fang X Y, et al. Metasurface orbital angular momentum holography[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 2986.

- [80] Hu Y Q, Luo X H, Chen Y Q, et al. 3D-integrated metasurfaces for full-colour holography[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 86.
- [81] Jiang Q, Jin G F, Cao L C. When metasurface meets hologram: principle and advances[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2019, 11(3): 518.
- [82] Gao H, Wang Y X, Fan X H, et al. Dynamic 3D meta-holography in visible range with large frame number and high frame rate[J]. *Science Advances*, 2020, 6(28): eaba8595.
- [83] Wu P C, Chen J W, Yin C W, et al. Visible metasurfaces for on-chip polarimetry[J]. *ACS Photonics*, 2018, 5(7): 2568-2573.
- [84] Arbabi E, Kamali S M, Arbabi A, et al. Full-Stokes imaging polarimetry using dielectric metasurfaces[J]. *ACS Photonics*, 2018, 5(8): 3132-3140.
- [85] Rubin N A, D'Aversa G, Chevalier P, et al. Matrix Fourier optics enables a compact full-Stokes polarization camera[J]. *Science*, 2019, 365(6448): eaax1839.
- [86] Basiri A, Chen X H, Bai J, et al. Nature-inspired chiral metasurfaces for circular polarization detection and full-Stokes polarimetric measurements[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 78.
- [87] Thurston R, Heritage J, Weiner A, et al. Analysis of picosecond pulse shape synthesis by spectral masking in a grating pulse compressor[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1986, 22(5): 682-696.
- [88] Divitt S, Zhu W Q, Zhang C, et al. Ultrafast optical pulse shaping using dielectric metasurfaces[J]. *Science*, 2019, 364(6443): 890-894.
- [89] Weiner A M. *Ultrafast optics*[M]. Hoboken: Wiley, 2008.
- [90] Liu V, Fan S H. S4: a free electromagnetic solver for layered periodic structures[J]. *Computer Physics Communications*, 2012, 183(10): 2233-2244.
- [91] Chatel B, Degert J, Girard B. Role of quadratic and cubic spectral phases in ladder climbing with ultrashort pulses[J]. *Physical Review A*, 2004, 70(5): 053414.
- [92] Walecki W J, Fittinghoff D N, Smirl A L, et al. Characterization of the polarization state of weak ultrashort coherent signals by dual-channel spectral interferometry[J]. *Optics Letters*, 1997, 22(2): 81-83.
- [93] Iaconis C, Anderson M E, Walmsley I A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(10): 792-794.
- [94] Chen L, Huo P, Song J, et al. Shaping polarization within an ultrafast laser pulse using dielectric metasurfaces[J]. *Optica*, 2023, 10(1): 26-32.
- [95] Chen L, Zhu W Q, Huo P C, et al. Synthesizing ultrafast optical pulses with arbitrary spatiotemporal control[J]. *Science Advances*, 2022, 8(43): eabq8314.
- [96] Dorrah A H, Rubin N A, Tamagnone M, et al. Structuring total angular momentum of light along the propagation direction with polarization-controlled meta-optics[J]. *Nature Communications*, 2021, 12: 6249.
- [97] Chong A, Wan C H, Chen J, et al. Generation of spatiotemporal optical vortices with controllable transverse orbital angular momentum[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14: 350-354.
- [98] Hancock S W, Zahedpour S, Goffin A, et al. Free-space propagation of spatiotemporal optical vortices[J]. *Optica*, 2019, 6(12): 1547-1553.
- [99] Huang J Y, Zhang J H, Zhu T F, et al. Spatiotemporal differentiators generating optical vortices with transverse orbital angular momentum and detecting sharp change of pulse envelope [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2022, 16(5): 2100357.
- [100] Shaltout A M, Lagoudakis K G, van de Groep J, et al. Spatiotemporal light control with frequency-gradient metasurfaces[J]. *Science*, 2019, 365(6451): 374-377.
- [101] Kondakci H E, Abouraddy A F. Diffraction-free space-time light sheets[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11: 733-740.
- [102] Kondakci H E, Abouraddy A F. Optical space-time wave packets having arbitrary group velocities in free space[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 929.
- [103] Luttmann M, Vimal M, Guer M, et al. Nonlinear up-conversion of a polarization Möbius strip with half-integer optical angular momentum[J]. *Science Advances*, 2023, 9(12): eadf3486.
- [104] Froula D H, Turnbull D, Davies A S, et al. Spatiotemporal control of laser intensity[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(5): 262-265.
- [105] Service R F. Laser labs race for the petawatt[J]. *Science*, 2003, 301(5630): 154-156.
- [106] Mourou G, Tajima T. The extreme light infrastructure: optics' next horizon[J]. *Optics and Photonics News*, 2011, 22(7): 47-51.
- [107] Opportunities in intense ultrafast lasers: reaching for the brightest light[M]. Washington, DC: The National Academies Press, 2018.
- [108] Corkum P B, Krausz F. Attosecond science[J]. *Nature Physics*, 2007, 3: 381-387.
- [109] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [110] Mao D, Wang H Q, Zhang H Z, et al. Synchronized multi-wavelength soliton fiber laser via intracavity group delay modulation[J]. *Nature Communications*, 2021, 12: 6712.
- [111] Jia W H, Gao C X, Zhao Y M, et al. Intracavity spatiotemporal metasurfaces[J]. *Advanced Photonics*, 2023, 5(2): 026002.

## Spatio-Temporal Control of Ultra-Fast Pulses Using Metasurfaces (Invited)

Chen Lu<sup>1\*\*\*</sup>, He Mingjie<sup>2</sup>, Wu Qiang<sup>1,2\*\*</sup>, Xu Jingjun<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>*School of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China;*

<sup>2</sup>*TEDA Institute of Applied Physics, Nankai University, Tianjin 300457, China*

### Abstract

**Significance** Ultrashort pulses lay the foundation of ultra-fast optics. The ability to control all the fundamental degrees of freedom of ultrashort pulses in both space and time domains has the potential to unlock a manifold of exotic light-matter

interactions, unveil new physics, and enable new applications. The unique characteristics of ultrashort pulses, including short pulse duration, wide spectral bandwidth, and high peak power, make spatio-temporal ultrashort pulse tailoring face quite challenging. As ultra-thin planar optical elements composed of an array of deep sub-wavelength nanostructures, metasurfaces enable multifunctional optical field control at the nanoscale. This controllability, combined with merits including easy fabrication, integrability, and high damage threshold, makes metasurfaces ideal candidates in sculpting ultra-fast optical fields. We review the latest developments in metasurface-enabled spatio-temporal control of ultrashort pulses, especially by leveraging the Fourier synthesis approach to achieve complete four-dimensional pulse shaping in space and time. Then, brief discussions are carried out on free-space spatio-temporal pulse shaping via metasurfaces.

**Progress** Ultrashort pulse shaping is usually realized by employing the Fourier synthesis approach, where a grating and lens pair disperse and then focus different wavelength components of the pulse at the Fourier plane to spatially separate different wavelengths. A modulator, which traditionally can be a liquid-crystal-based spatial light modulator, a digital micromirror device or an acousto-optic modulator, is placed at the Fourier plane to provide the pulse-shaping masking function. Recently, finely tailored ultrashort pulse shaping operations have been realized by adopting an ingeniously designed single-layer dielectric metasurface as the modulator. Temporal phase modulation, independent temporal phase and amplitude modulation, and temporal polarization modulation of the ultrashort pulses are theoretically and experimentally demonstrated. We discuss metasurface-enabled temporal pulse shaping in Section 2, where the metasurface device is divided into hundreds of independently designed units termed as “superpixels”, with each superpixel composed of a two-dimensional array of identical nanopillars. For phase-only modulation, nanopillars with square cross-sections are sufficient. Meanwhile, pulse compression and pulse distortion are demonstrated as examples of the temporal phase modulation capability. For independent phase and amplitude modulation, nanopillars with rectangular cross-sections are selected, with phase modulations along the two birefringent axes following the half-wave plate condition. As a result, the transmitted phase is controlled by the lateral size of the nanopillar, while the transmitted amplitude is engineered by the rotation angle of the nanopillar. To demonstrate the versatility of this approach, we split an input ultrashort pulse with a temporal duration of 10 fs into two replicas, separated by 30 fs. Meanwhile, the temporal polarization state of the ultrashort pulse can also be controlled with rectangular nanopillars. For a nanopillar with a rotation angle  $\theta$ , the phase retardation between the transmitted phase along the two birefringent axes determines the transmitted polarization change. This approach allows the conversion of any arbitrary input temporal polarization states into desired output temporal polarization states. A variety of polarization-shaped ultrashort pulses with rich instantaneous time-varying polarization states are synthesized. Additionally, by further engineering the masking function at both the superpixel and the individual nanopillar level, complete four-dimensional properties (phase, amplitude, polarization, and spatial wavefront) of an ultrashort pulse can also be manipulated via a single-layer dielectric metasurface, which is discussed in detail in Section 3. Complex spatio-temporal wave packets that previously either have only been theoretically proposed or require complicated high-harmonic nonlinear generation processes are experimentally synthesized. The packets include a light coil exhibiting a helical intensity distribution evolution and another pulse with coherently multiplexed time-varying orbital angular momentum (OAM) orders. This approach provides a universal way for controlling the complete four-dimensional properties of light, and can be easily extended to synthesize other forms of spatio-temporal wave packets by metasurface design engineering, or wavelength regimes by nonlinear response. In addition to shaping ultrashort pulses via a metasurface-enabled Fourier synthesizer, free-space spatio-temporal pulse shaping using metasurfaces is also discussed in Section 4. Compared to the Fourier approach, free-space pulse shaping greatly lowers the complexity of the shaping apparatus but puts forward more requirements for the frequency interval of the input pulse and nanopillar geometry. Thus, metasurface-enabled free-space spatio-temporal pulse shaping is still an ongoing and active research field. Till now, several spatio-temporal wave packets such as pulses carrying transverse OAMs have been yielded by free-space metasurfaces.

**Conclusions and Prospects** We have witnessed significant developments in spatio-temporal control of ultrashort pulses in the past few years, and the advancements have already shown great potential in numerous fields. With the current trajectory of ultrashort pulse shaping moving toward more extreme high brightness sources and more complex functionalities, spatio-temporal optical field control approaches with higher resolution, wider spectral coverage, higher damage threshold, more compact footprint, and higher active tunability are highly desirable. We review the outstanding performance of the metasurface-based approaches and their potential to overcome some of these challenges. It is expected that continuous studies on metasurface design, simulation, and fabrication can have more general and complete control over the spatio-temporal wave packet synthesis.

**Key words** optical field modulation; pulse shaping; metasurfaces; spatio-temporal control; Fourier synthesis