

钛蓝宝石飞秒超快光谱技术及其应用进展*

杨 宏 张铁桥 王树峰 龚旗煌

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

(1999 年 10 月 13 日收到; 1999 年 11 月 29 日收到修改稿)

介绍飞秒激光技术的进展、钛蓝宝石飞秒激光放大技术及飞秒分辨相关测量技术, 并介绍了飞秒分辨光荧光上转换和光克尔实验技术及其在各种学科中的应用.

关键词: 飞秒激光, 飞秒光谱, 光克尔, 光荧光

PACC: 4280W, 4265

1 飞秒激光进展

1981 年, 脉冲碰撞锁模(colliding pulse mode-locking—CPM)染料激光器的发明^[1], 第一次使得光脉冲的宽度进入了飞秒量级. 80 年代后期, 一些具有优良物理、化学特性的宽增益带宽的固体激光增益介质相继被研制出来, 致使在 90 年代, 脉冲钛蓝宝石激光器(Ti:sapphire laser)得到迅速发展, 成为迄今应用最广泛的飞秒激光源. 如今, 直接从激光器腔内产生的最短光脉冲已达 $5.4 \text{ fs}^{[2]}$, 而经压缩器压缩产生的光脉冲已短至 $4.0 \text{ fs}^{[3]}$. 飞秒级超短光脉冲的获得, 突破了因光电响应限制而未能开展的小于皮秒的动力学过程研究的极限, 而将有关瞬态动力学研究的领域拓宽到亚皮秒及飞秒时域. 为研究和认识自然界提供了崭新的方法. 此外, 飞秒啁啾放大技术的应用, 实现了桌面大小尺寸超强激光光源的运转, 又为从实验上开展超强光物理的研究提供了新手段.

2 飞秒激光技术

2.1 激光锁模技术

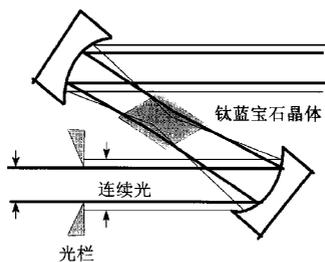
目前, 激光锁模方式大致有三种: 主动锁模、被动锁模和克尔透镜锁模(Kerr lens mode-locking—KLM). 主动锁模为安装一种调制器作为光开关, 只有调制开关开启时到达的光脉冲才被放大. 这种锁

模方式被广泛地应用于 YAG 和 YLF 等固体皮秒激光器中. 被动锁模方式采用可饱和吸收体作为光开关, 激光在腔中来回振荡不断放大, 当光强超过吸收体的饱和光强时, 可饱和吸收体瞬时漂白而强光得以通过, 输出光脉冲. 这种方式常用于染料皮秒及飞秒激光器中. 克尔透镜锁模^[4]则是一种新型的锁模方式, 近年来它在飞秒钛蓝宝石激光器中得到广泛的应用. 其工作原理则是利用增益介质, 即钛蓝宝石光克尔效应. 介质的折射率随光强而变化, 有 $n = n_0 + n_2 I$, 其中 n_0 为弱光情况下介质折射率, n_2 为非线性折射率. 如果激光为高斯光束, 那么对应于光束中心位置的介质折射率将大于光束边缘位置的折射率, 介质产生等效于凸透镜的作用, 出现聚焦过程. 由于它是一种依赖于激光强度的非线性光学效应, 克尔透镜只有在光强足够高时才能明显表现出来. 因此, 在钛蓝宝石激光器中, 只有脉冲的锁模光束才能建立克尔透镜使光束收缩. 克尔透镜锁模的工作原理如图 1 所示, 在适当位置加入合适尺寸的光阑, 可使锁模的脉冲光束无损耗通过而连续光束将部分被阻挡, 这样, 连续光的损耗远大于脉冲光, 从而保证了脉冲光的振荡和输出. 与其他两种锁模方式比较, 克尔透镜锁模具有可以在不同的波长下独立操作并以简单的机械结构调节输出功率的优点.

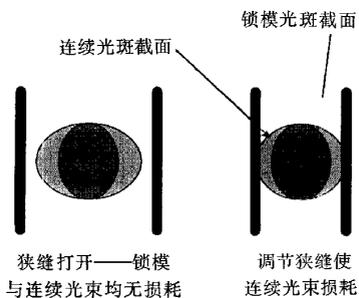
2.2 超短脉冲的获得

由光学元件和增益介质引入的群速色散(group-velocity dispersion—GVD)和自相位调制

*国家自然科学基金(批准号:19525412 和 19884001)和国家攀登计划(批准号:G1999075207)资助的课题.



(a) 克尔透镜锁模原理



(b) 钛蓝宝石晶体截面

图 1 克尔透镜锁模工作原理图

(self-phase modulation——SPM)是获得超短脉冲的最大障碍。在一般的增益介质或光学材料中,群速度散总是存在。在群速度散的作用下,同一脉冲的不同频率分量有不同的传播速度,使脉宽按频率展宽。对应于图 2 所示的正常色散($dn/d\lambda > 0$)介质,脉冲中 长波分量提前于短波分量,形成具有正啁啾的光脉冲(在一个脉冲当中,如果频率与时间相关,就称该脉冲含有啁啾)。

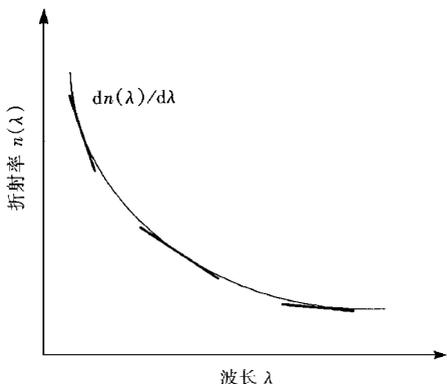


图 2 正常色散曲线

自相位调制则是由脉冲光的光克尔效应造成的。脉冲光光强随时间变化导致折射率也随时间变化。这将引入光脉冲的附加相移：

$$\Phi_{NL}(t) = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 \frac{L_k}{A_{off}} I \equiv k |E(t)|^2.$$

它对应的光脉冲频率的改变量的大小可以表示为

$$\Delta\omega = - \frac{\partial\Phi_{NL}(t)}{\partial t} = -k \frac{\partial I(t)}{\partial t}.$$

可以看出,在脉冲前沿, $\frac{\partial I(t)}{\partial t} > 0$, $\Delta\omega(t) < 0$,以低频成分为主(红移),在脉冲后沿, $\frac{\partial I(t)}{\partial t} < 0$, $\Delta\omega(t) > 0$,以高频成分为主(蓝移)。脉冲经过 SPM 效应后,其前沿具有负的啁啾,后沿具有正的啁啾,而脉冲中部具有近似线形的正啁啾。SPM 的作用将使在正群速度散介质中传播的脉冲光的脉宽进一步得到展宽。

为了获得窄的光脉冲,则需要加入适当的补偿系统来补偿正群速度散及自相位调制引起的脉宽加宽。很明显,引入相反的过程 $d^2n/d\lambda^2 < 0$,即产生负的群速度散,则将有效地补偿介质中 GVD 产生的正啁啾和 SPM 产生的线形正啁啾。从而得到较窄的光脉冲。图 3 所示双棱镜对系统^[5]是啁啾补偿常用方式。当含有正啁啾的脉冲进入棱镜 1,棱镜对不同波长的光有不同的折射角,光束色散后进入棱镜 2,蓝光分量比红光分量有更大的折射角,所以红光光程大于蓝光,产生负群速度散(GVD 值可以由进入光路的棱镜高度来调节,经过补偿可以使总的啁啾接近于零)。

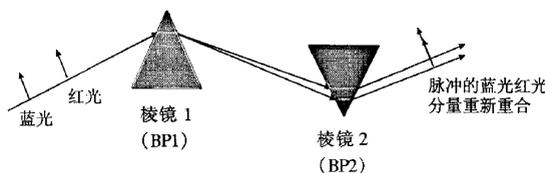


图 3 群速度散补偿

2.3 飞秒啁啾放大技术(CPA)

飞秒激光放大技术是获得大能量飞秒光源的唯一手段。为了保证在放大过程中能量不超过光学元件的损伤阈值而破坏光学元件,放大过程需经过脉冲的展宽—放大—压缩三个步骤。脉冲的展宽和压缩是由衍射光栅实现的,其工作原理如图 4 所示。种子飞秒光脉冲入射到光栅上,不同频谱分量被分开。当光栅以一定的方式放置,可使脉冲经过光栅后产生正啁啾,脉冲可被展宽到 1—100 ps 量级。展宽后的啁啾脉冲在放大腔中被有效放大后输出到光栅压

缩系统,如图 5 所示.压缩光栅的放置与展宽光栅相反,但角度相同,使引入的负啁啾量与展宽时产生的正啁啾相等,脉冲得到有效压缩.

1997 年, Ross 等人^[6]提出了光学参量啁啾脉冲放大新技术,即 OPCPA(optical parametric chirped pulse amplification).作为一种进一步提高激光峰值功率的新设想,OPCPA 的提出引起大家的极大重视.有关实验方案设计的峰值功率为 10^{16} W,对应于聚焦功率高达 10^{23} W/cm².OPCPA 方案主要是利用光学参量放大(OPA),在特定条件下,可提供极宽增益带宽的优点.保证更宽的展宽光谱得以放大.含有越宽谱线的放大光压缩后将给出越短的光脉冲.

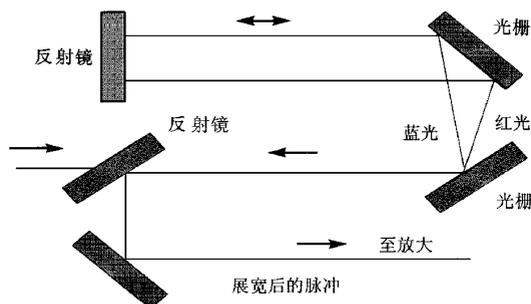


图 4 脉冲的展宽

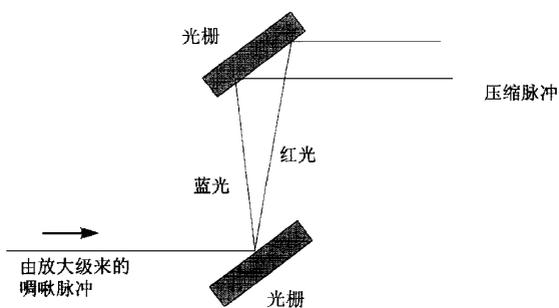


图 5 脉冲压缩

3 飞秒分辨光谱技术

飞秒脉冲因其时间很短,没有任何器件可以直接探测如此快速的变化过程,相关测量技术^[7]是超快探测中常规的方法.相关测量的基本原理,可以以测量激光脉冲宽度的二次谐波自相关测量为例来说明.利用分束镜将待测光脉冲分成两束,其中一束经可调延迟线,两束光经不同路线在倍频晶体上重合.当两脉冲在时间上完全重合,二次谐波为最大.随延

迟线前后移动,两脉冲光程差增加,重叠减少,导致二次谐波减小.当两光束的光程差达到脉冲宽度时,将不重叠,无二次谐波产生.这样,实质上对时间的测量转化为对延迟长度的测量,而 10 fs 的时间分辨对应于 $3 \mu\text{m}$ 的空间分辨.这在空间上很容易通过步进马达加以控制.因此,相关测量将不需要超快速光电器件即可达到飞秒量级时间分辨.

目前基于相关技术发展起来的飞秒光谱技术有抽运-探测^[8](反射式、透射式)、光荧光上转换、光克尔、四波混频、飞秒 SNOM 以及 Z 扫描等.下面将结合我们的工作选取光克尔和光荧光上转换为例进行介绍.

3.1 飞秒分辨光克尔实验

飞秒分辨光克尔实验^[9,10]是研究材料超快三阶非线性光学响应的有效手段.图 6 为我们实验室所建设的实验装置.由钛蓝宝石激光器(Mira-900F,美国相干公司)输出的飞秒光脉冲经分束镜 M2 分成抽运光和探测光两束.探测光路上放置一偏振器 P1 使其线偏振方向与抽运光成 45°.抽运光强度约是探测光的 10 倍,抽运光经延迟线与探测光平行后经透镜 L1 会聚于 1 mm 厚的样品池中.通过样品的探测光,通过与 P1 成 90° 角的另一偏振器 P2.这样,通过 P2 的光束完全由光克尔效应产生与探测光垂直偏振的信号光.信号通过硅光电池转换后由锁相放大器收集并输入计算机,延迟线也由计算机同时控制.为了提高信噪比,对探测光和抽运光分别斩波,从而检测差分信号.测得的信号大小反映出材料三阶非线性光学系数的大小.信号的变化过程则表现出非线性响应的动力学过程.

3.2 飞秒分辨光荧光上转换技术

光荧光上转换也是飞秒光谱研究的重要手段,

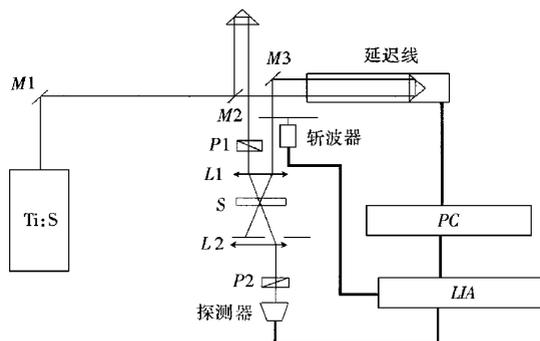


图 6 光克尔实验装置

可用于研究许多材料的电荷转移快速过程^[11]、生物蛋白^[12]、叶绿素光合作用^[13]以及其他荧光物质的超快光动力学过程^[14-16]。实验装置如图 7 所示。以钛蓝宝石激光器作为光源, 光束由透镜 L_1 聚焦在 BBO 晶体 BBO1 上, 产生倍频光。分光镜 BS 反射倍频光经 M_3, M_4, M_5 后经透镜 L_3 聚焦在样品池, 激发样品产生荧光。荧光经透镜 L_4 收集。通过 BS 的基频光则经延迟线、 $\lambda/2$ 波片旋转偏振方向后经反射镜 M_6 反射后与荧光平行, 两平行光束经透镜 L_5 聚焦相交在和频晶体 BBO2 上产生上转换紫外信号光, 经滤色片由透镜收集进入光谱仪分光, 最后通过光电倍增管进行光电转换由光子计数器显示, 并输入计算机进行数据采集。通过计算机控制基频光的延迟, 可以直接地给出由倍频光激发的材料荧光的变化曲线。图 8 为探测的花靛染料分子荧光变化过程^[17]。通过拟合, 可以得到染料的荧光衰减寿命分别为 < 1 ps 和 ~ 5.4 ps。

4 结束语

飞秒激光技术的迅速发展和相关激光设备的不断创新, 提供了研究瞬态光过程新的手段。作为一个新兴的领域, 飞秒超快激光本身也仍处在不断发展的阶段。在争取获得更短光脉冲方面, 人们正在寻求突破飞秒界限的新方法。近期根据强场高次谐波平台区谐波级次分布规律与激光纵模结构的惊人相似和超宽的谐波辐射, 提出通过锁定各谐波相位产生阿秒 (10^{-18} s) 光脉冲的可能性。获得更高峰值功率的光源则更是竞争的热点。近期日本将运转 10^3 MW (20 J, 20 fs) 的超高强激光系统。相信通过光物理与化学、生命科学、医学和材料科学的相互合作及学科之间的渗透和交叉, 飞秒激光必将推动人类科学和技术的进步。

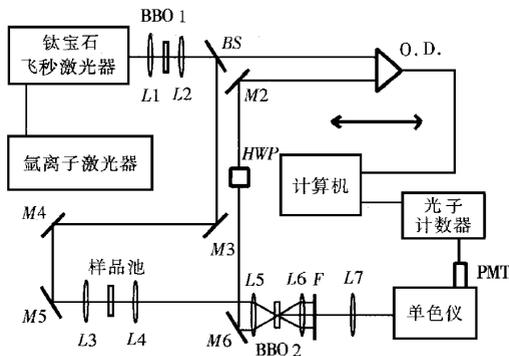


图 7 飞秒分辨光荧光上转换实验装置

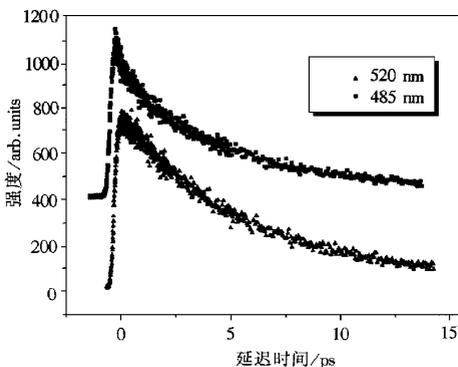


图 8 花靛染料分子荧光寿命曲线 为了清楚 520 nm 的衰减曲线垂直向上移动

- [1] P. L. Fork, B. I. Greene, C. V. Shank, *Appl. Phys. Lett.*, **38** (1981) 671.
- [2] U. Morgner, F. X. Kartner, S. H. Cho *et al.*, *Opt. Lett.*, **24**(1999) A11.
- [3] M. Nisoli *et al.*, *Opt. Lett.*, **22**(1997) 522.
- [4] D. E. Spence, P. N. Kean, W. Sibbett, *Opt. Lett.*, **16**(1991), 42.
- [5] R. L. Fork, O. E. Martinez, J. P. Gordon, *Opt. Lett.*, **9** (1984) 150.
- [6] I. N. Ross, P. Matousek, M. Towrie, *Opt. Commun.*, **144** (1997) 125.
- [7] S. L. Shapiro, *Ultrashort Light Pulses* (Spring-Verlag, Berlin, 1977).
- [8] W. B. Bosma, S. Mukamel, B. I. Greene *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992) 2456.
- [9] Qi-huang Gong, Jian-liang Li, Tie-qiao Zhang *et al.*, *Chin. Phys. Lett.*, **15**(1998) 30.
- [10] Jian-liang Li, Shu-feng Wang, Hong Yang *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **288**(1998) 175.
- [11] J. M. Rehm, G. L. Mclendon, Y. Nagasawa *et al.*, *J. Phys. Chem.*, **100**(1996) 9577.
- [12] M. Chattoraj, B. A. King, G. U. Bublitz *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **93**(1996) 8362.
- [13] R. J. Stanley, B. King, S. G. Boxer, *J. Phys. Chem.*, **100** (1996) 12052.
- [14] H. Kandori, H. Sasabe, *Chem. Phys. Lett.* **216**(1993) 126.
- [15] R. Jimenez, G. R. Fleming, P. V. Kumar *et al.*, *Nature*, **369** (1994) 471.
- [16] R. M. Stratt, M. Maroncelli, *J. Phys. Chem.*, **100**(1996), 12981.
- [17] Tie-qiao Zhang, Ci-ping Chen, Qi-huang Gong *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **298**(1998) 236.

ULTRAFAST SPECTROSCOPY AND APPLICATIONS BASED ON TI SAPPHIRE FEMTOSECOND LASER *

YANG HONG ZHANG TIE-QIAO WANG SHU-FENG GONG QI-HUANG

(*Department of Physics , State Key Laboratory for Artificial Microstructures and
Mesoscopic Physics , Peking University , Beijing 100871 , China*)

(Received 13 October 1999 ; revised manuscript received 29 November 1999)

ABSTRACT

The development of Ti :sapphire femtosecond laser is reviewed. The basic principles of its mode-locking , ultrashort pulse generation and its amplifiers are introduced. The ultrafast time-resolved laser spectroscopy , including femtosecond fluorescence up-conversion and optical Kerr effect as well as its applications are presented.

Keywords : femtosecond laser , femtosecond spectroscopy , optical Kerr effect , fluorescence up-conversion

PACC : 4280W , 4265

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19525412 and 19884001) and the National " Climbing " Program of China (Grant No. G1999075207).