

飞秒激光脉冲在正色散固体材料中的自压缩^{*}

陈晓伟[†] 朱毅 刘军 冷雨欣 葛晓春 李儒新 徐至展

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800)

(2005 年 1 月 4 日收到, 2005 年 4 月 19 日收到修改稿)

实验研究了正色散固体介质中的激光脉冲自压缩现象, 证明了无需任何外加色散补偿情况下, 固体透明介质中的自聚焦传输过程可使高功率飞秒激光脉冲实现时域脉冲压缩, 并详细研究了输出脉冲的时域和频域特性随入射脉冲强度的演化规律. 实验结果表明脉冲自压缩量随入射脉冲强度的增加呈递增趋势, 然而当入射光强增大到足以引起超连续谱及锥形辐射产生时, 脉冲时域形状会发生分裂. 此外还发现发散光束入射情况下同样可以观察到脉冲自压缩现象.

关键词: 超短激光脉冲, 脉冲压缩, 非线性传输

PACC: 4265J, 5235M

1. 引 言

高强度超短激光脉冲是许多基础研究的重要工具, 在激光物理研究领域更是有着不可替代的作用, 比如高次谐波^[1-3], 尾波场粒子加速^[4], 阿秒脉冲的产生^[5]等都需要高强度的超短激光脉冲作为驱动源^[6]. 虽然掺钛蓝宝石(Ti:sapphire)激光振荡器直接输出的脉冲可短至小于 5fs, 但是放大系统中的增益窄化效应使得放大后的脉冲宽度往往在 20fs 以上. 腔外压缩技术是一种获得更短脉冲的有效手段, 而且一直以来对于超短脉冲的获得都起着非常重要的作用. 研究者们在这个领域已进行了很多细致的理论和实验研究工作, 并取得了长足的进展, 比如, 采用充气气空心光纤展宽光谱然后用液晶空间相位调制器再压缩的方法获得了小于 4fs^[7,8]的周期量级超短脉冲输出, 但是输出能量只有几百 nJ 至十几 μ J; 最近 Hauri 等人^[9]报道了他们的最新实验成果, 利用超短脉冲在氩气中的成丝过程展宽光谱, 然后用啁啾镜补偿色散获得了 0.38mJ, 5.7fs 的近红外超短脉冲, 这种方法极大地降低了实验的难度, 并适于较高能量的脉冲压缩. 此外, 利用固体材料作为光谱展宽介质^[10,11]是另一种吸引人的外腔压缩方法, 这种

技术的优越性在于实验装置非常简单, 而且理论上对于入射脉冲能量没有基本的限制, 适用于压缩更高能量的激光脉冲.

可以看出, 以上腔外压缩技术的基本思想大都基于利用非线性介质中的自相位调制(SPM)效应展宽光谱, 然后用色散补偿元件补偿光谱中的频率啁啾, 从而达到压缩脉冲宽度的目的. 然而这种方法产生的宽带光谱往往带有非常复杂的非线性频率啁啾, 使得再压缩过程变得很困难, 压缩得到的时域脉冲也往往带有比较大的基座, 于是研究者们开始考虑并寻求一种方法不需后继色散补偿也可以实现脉冲压缩. 之前人们在用三维非线性薛定谔方程(3D NLSE)理论模拟飞秒激光脉冲在透明介质中的非线性传输过程时发现, 光束的自聚焦效应会使高功率飞秒脉冲在空间与时间上出现自压缩现象^[12,13]. 2000 年 Koprnikov 等人^[14]报道了百飞秒量级高能量激光脉冲在氩气和甲烷中的自压缩实验, 结果应归因于高强度激光脉冲在气体介质中的自波导传输过程^[9,15]. 最近, Wagner 等人^[16]报道实验实现了 30fs 的入射脉冲通过充低气压氩气空心光纤中的非线性传输自压缩至 13fs, 但他们认为造成脉冲自压缩的主要机理是高强度入射脉冲(10^{15} W/cm²)引起的多光子电离(MPI)过程以及波导效应对脉冲的作用,

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 69925513, 19974058)上海科技委员会基础研究重大项目资助的课题.

[†] E-mail: Jannel_chen@siom.ac.cn

而不是自聚焦效应。

众所周知,固体材料中无论是色散参数还是非线性参数相对于气体介质都有着数量级上的差别,即使如此,理论研究认为入射峰值功率略大于自聚焦阈值的飞秒激光脉冲在固体材料中的自通道传输过程也会导致脉冲的压缩^[17],甚至达到周期量级^[18,19]。然而迄今为止,这方面的工作还仅限于理论研究,而且通常考虑的是长脉宽(百飞秒量级),低入射峰值功率(几 MW 量级),紧聚焦(入射光斑半径 $\sim 10\mu\text{m}$)情况,这对于获得能够实际应用的超短脉冲还有一定的距离。我们在实验中采用脉宽约 50fs,峰值功率达 GW 量级的超短脉冲作为初始脉冲源,在松聚焦情况下入射到正色散固体材料(BK7 玻璃)中,验证了高功率超短激光脉冲仅经过固体材料中的非线性传输即可实现时域脉冲压缩,实验实现了将 50fs 的激光脉冲自压缩至 20fs。本文还详细研究了输出脉冲的时域及频域特性随入射脉冲强度的演化规律,实验结果表明脉冲自压缩量随入射脉冲强度的增加呈递增趋势,而当入射光强增大到足以引起超连续谱及锥形辐射产生时,脉冲时域形状则会发生分裂。此外我们发现脉冲自压缩现象不仅在入射激光为会聚光束时存在,在发散光束情况下同样也可以观察到,但脉冲自压缩量比会聚光束情况时略小。

2. 实验及结果讨论

实验装置示意图如图 1 所示。脉冲源为一台商用千赫兹啁啾脉冲放大(CPA)飞秒激光系统(Spitfire, Spectra Physics),可提供中心波长为 800nm,脉冲宽度(FWHM)约 50fs 的激光脉冲,单脉冲能量约 0.5mJ,光束质量因子 $M^2 \approx 1.3$,谱宽(FWHM)约 22nm。激光光束在被透镜聚焦之前先经过一个由一个半波片和一个偏振片组成的能量衰减器(图中未画出),以连续调节入射光脉冲能量。经透镜($f=1\text{m}$)聚焦后的光束再由一个镀银凹面镜($f=0.5\text{m}$)准直,固体材料作为非线性介质放置于透镜与透镜几何焦点之间。准直后的光束被一个很薄的分束片(B.S.)分为两部分,一部分引入光栅光谱仪(SpectraPro-300i, Acton Research Corporation)监测出射脉冲光谱,另一部分则被引入一台超短脉冲测量仪器 SPIDER(APE, Co. Ltd.)中。利用 SPIDER 可实时测量脉冲的时域形状及频域相位,更利于研究和

分析超短脉冲在介质中复杂的非线性传输过程。实验中选用一块 3mm 厚的 BK7 玻璃作为非线性介质,使其前表面距离透镜 860mm,入射光斑半径约 $400\mu\text{m}$ 。材料位置确定后,通过旋转半波片的角度来改变入射脉冲能量,从而改变入射光强度的大小,以研究输出脉冲特性与入射光强度间的关系。

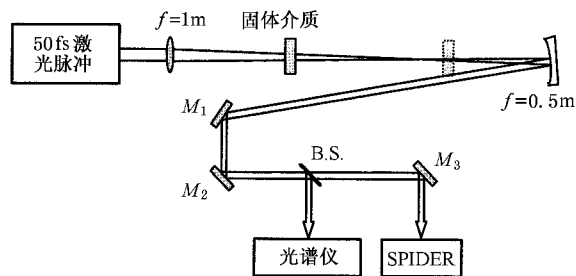


图 1 实验装置示意图 (M_1-M_3 为镀银平面反射镜, B.S. 为光束分束片)

图 2 给出了不同入射脉冲能量下输出脉冲的宽度以及时域形状图形。实验中入射脉冲宽度(FWHM)为 50fs,采用的能量范围为 0.05mJ 至 0.34mJ,可以注意到我们使用的入射脉冲峰值功率达 GW 量级,超过 BK7 玻璃的自聚焦阈值功率 3 个数量级,也远远大于之前相关理论研究^[17-19]中考虑的入射脉冲峰值功率(通常在 MW 量级,几倍于固体材料自聚焦阈值功率)。对于 BK7 玻璃,非线性系数 $n_2 = 3.45 \times 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$,对应的自聚焦阈值功率 $P_{cr} \approx 1.8\text{MW}$ 。入射脉冲能量为 0.05mJ 时,对应的峰值功率 $P_{in} \approx 1\text{GW}$,入射峰值功率密度 $I_{in} \approx 3.97 \times 10^{11} \text{W}/\text{cm}^2$,输出脉冲形状几乎没有变化(图 2(b)),但宽度从 50fs 压缩到 44fs。随着入射脉冲能量逐渐增加,输出脉冲宽度进一步被压缩,入射脉冲能量越大获得的输出脉冲就越短,当入射脉冲能量为 0.3mJ 时输出脉冲宽度达到最小值 20fs,约 1.25 倍变换限脉冲宽度,对应 2.5 倍压缩因子。而当入射脉冲增大至 0.34mJ 时,对应的入射峰值功率密度 $I_{in} \approx 2.7 \times 10^{12} \text{W}/\text{cm}^2$,输出脉冲时域形状分裂成为两个峰。与此同时可以观察到彩色的锥形辐射,但透过玻璃片的光束能量并没有大幅度降低,这是由于锥形辐射散射到四周的能量其实很小,主体光斑依然能够保持比较好的形状。

我们认为飞秒脉冲在固体材料中的自聚焦效应是导致脉冲自压缩的主要动力。因为入射脉冲的峰值功率远远大于非线性介质的自聚焦阈值功率,所以脉冲进入固体介质后引起很强的三阶非线性电极

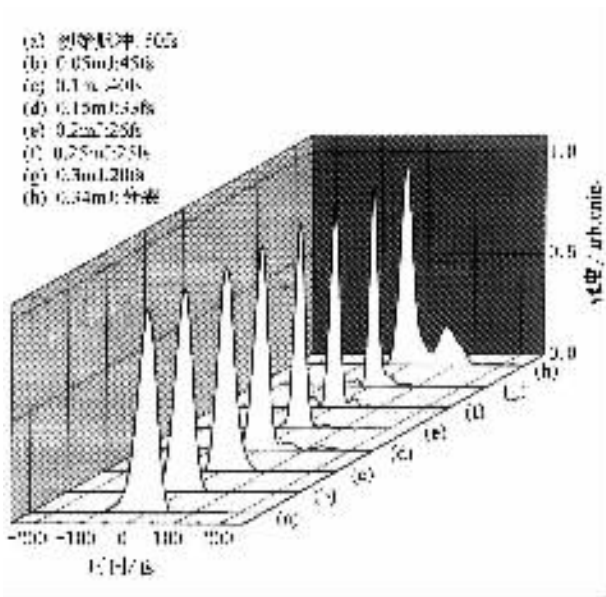


图2 会聚光束情况下不同入射脉冲能量时输出脉冲的时域图形

化效应,使得介质折射率随光强度非线性感应变化,而入射激光脉冲的径向和时域光强分布均为高斯形,于是在固体介质中形成一种中心折射率高边缘折射率低的传输波导,这种波导的作用类似一个正透镜,使得脉冲离轴部分能量向脉冲峰值方向会聚,从而造成脉冲在时域和空域上的压缩^[13,17].然而高强度飞秒脉冲在固体介质中的传输是一个非常复杂的非线性过程,除自聚焦效应之外,这个过程还受到其他物理机理的影响,这些物理机理对脉冲的作用会引起脉冲时域及频域特性的变化.相应地,研究输出脉冲时域和频域特性的改变可以分析脉冲在传输过程中主要受到哪些物理机理的影响.

仔细观察图2中不同入射脉冲能量下输出脉冲的时域形状可以发现,随着入射脉冲能量的增加输出脉冲前沿逐渐开始变陡,同时脉冲后沿逐渐出现小的拖尾,入射脉冲能量继续增加,输出脉冲前沿也开始出现小脉冲,但前沿小脉冲与后沿拖尾相比强度要小一些,如图2(c—g)所示.这是因为脉冲进入玻璃材料以后强烈的自聚焦效应使脉冲在时域和空域上压缩,脉冲强度迅速增加,很高的光强度导致非线性介质的多光子电离,形成低密度的等离子体,等离子体对脉冲的自散焦效应与非线性吸收效应共同作用使得脉冲后沿能量逐渐衰减,并将脉冲峰值部分推向前沿,从而形成输出脉冲前沿陡峭后沿拖尾的形状^[20],脉冲前沿小脉冲的出现则是典型的高阶色散作用的结果.入射脉冲能量进一步增加,则会使脉冲从固体材料输出之前脉冲前沿尖峰开始衰减,

同时脉冲后沿开始重新聚焦,从而造成输出脉冲的双峰结构^[18],如图2(h)所示.可以看出,分裂出的两个子脉冲比较入射脉冲能量为0.3mJ时获得的压缩脉冲宽度要大,每个子脉冲的FWHM宽度均在30fs以上.

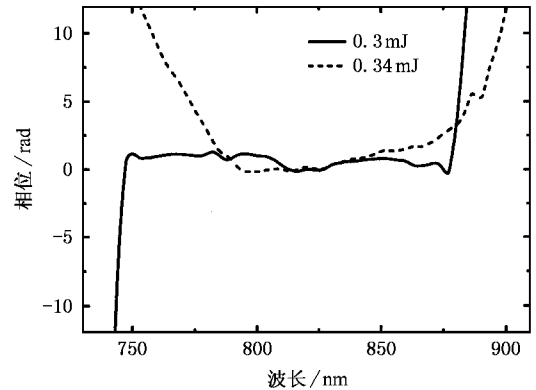


图3 会聚光束入射情况下入射脉冲能量分别为0.3mJ(实线)和0.34mJ(虚线)时输出脉冲的频域相位图形

等离子体在脉冲传输过程中的作用还体现在输出脉冲的频域相位上,从图3给出的入射脉冲能量为0.3mJ时输出脉冲的频域相位(实线)可以看出此时的频域相位相当平直.我们知道脉冲在介质中的SPM效应会使光谱展宽并带上正啁啾,而输出脉冲相位没有带上明显的啁啾,我们认为这是因为脉冲传输过程中形成的等离子体对介质折射率的贡献是随光强负向变化的,使得脉冲带上负啁啾并与SPM带来的正啁啾相互抵消,从而使输出脉冲保持无啁啾状态.而当入射脉冲能量太大时这种平衡被打破,使输出脉冲频域相位表现出啁啾特性,如图3中的虚线所示,与实曲线相比入射脉冲能量为0.34mJ时输出脉冲频域相位带有明显的正啁啾.这里需要指出的是,如前文所述高强度超短脉冲在固体介质中的传输过程是一个多种物理机理共同作用的过程,所以并不能单纯地认为某种现象只是某一种物理机理造成的,比如正色散介质中 $\chi^{(5)} < 0$,如果脉冲传输过程中介质的五阶非线性电极化效应足够强,而它对介质折射率的影响也是随光强负向变化的,那么它也很可能对脉冲自压缩有重要贡献^[14],然而人们对介质的高阶非线性特性研究还不是非常完善,所以目前绝大部分理论还是认为介质中光致电离引起的等离子体对介质折射率随光强负向变化起主导作用.

图4对比了不同入射脉冲能量时输出脉冲的光

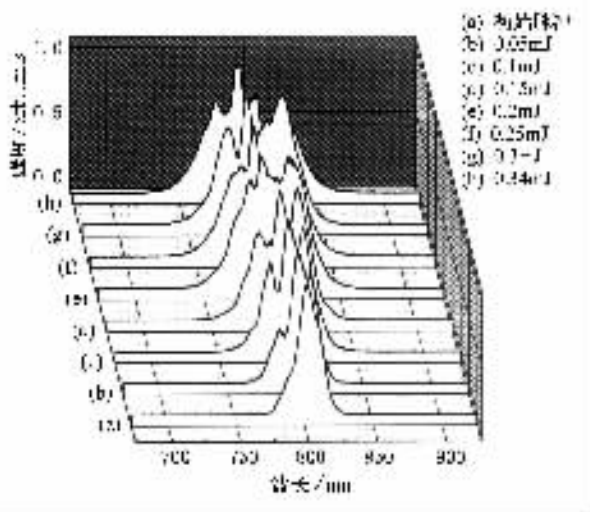


图 4 会聚光束入射情况下不同入射脉冲能量时输出脉冲的光谱

谱形状.显而易见,输出脉冲的光谱随入射脉冲能量的增大而逐渐变宽,从初始谱宽(FWHM)22nm 增大到 0.34mJ 时的 68nm(实验测得的光谱高斯拟和后估计得到),这是因为造成光谱展宽的主要机理是脉冲在介质中的 SPM 效应,而 SPM 的强弱与入射脉冲的强度成正比.比较不同入射脉冲能量下输出脉冲的光谱我们发现,光谱首先从蓝区开始展宽,入射脉

冲能量较低时,光谱在蓝区出现一个小台阶(图 4 (b , c)) ,而红区方向几乎没有变化,这主要是时空聚焦和自陡峭效应对脉冲作用的结果^[20,21].随着入射脉冲能量增强,蓝区的台阶逐渐变大,同时红区方向也开始展宽(图 4(d)) ,当入射脉冲能量增大到 0.2mJ 以上时,输出脉冲光谱向蓝区和红区方向展宽的程度相当(图 4(e—h)) ,这是因为此时 SPM 对光谱展宽的作用已占绝对优势,此外光谱表现出的振荡结构也是 SPM 作用的典型结果,与文献 11 给出的实验结果也非常符合.

实验中我们还尝试将固体材料放置在透镜几何焦点与凹面反射镜之间,如图 1 中虚线部分所示,令激光脉冲以发散光束入射到非线性介质内,结果发现脉冲自压缩现象同样存在,并且输出脉冲的自压缩率与入射脉冲强度成正比,与会聚光束情况类似;但是无论如何改变入射光强度,输出脉冲自压缩率总是无法超过 2 倍.图 5 给出了固体材料放在光路中不同位置时输出脉冲的时域和频域特性曲线.可以看出输出脉冲非常干净,没有明显的小脉冲,频域相位也很平直,然而时域脉冲形状并没有像会聚光束入射情况那样表现出明显的前沿陡峭后拖尾的现象,造成这些区别的原因还以待进一步研究.

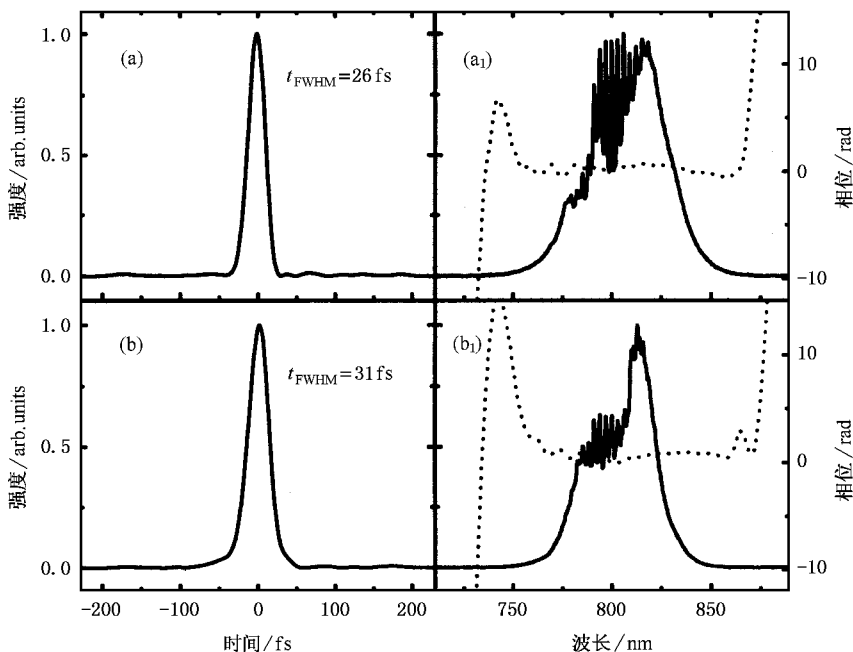


图 5 发散光束情况下,固体材料放在光路不同位置时输出脉冲的时域和频域特性曲线 (a , a₁) 距离透镜几何焦点 160mm (b , b₁) 距离透镜几何焦点 195mm

3. 结 论

本文实验采用脉冲宽度约 50fs 峰值功率达 GW 量级的超短激光脉冲作为初始脉冲,在松聚焦情况下入射到正色散固体材料 BK7 玻璃中,验证了高功率超短激光脉冲仅经过固体材料中的自聚焦传输即可实现脉冲压缩,实验实现了将 50fs 的激光脉冲自压缩至 20fs,对应 2.5 倍压缩因子.本文还研究了输出脉冲的时域及频域特性随入射脉冲强度的演化规律,实验结果表明脉冲自压缩量随入射脉冲强度的增加呈递增趋势,而当入射光强增大到足以引起超连续谱及锥形辐射产生时,脉冲时域形状则会发生

分裂,实验获得的压缩脉冲特性表明非线性介质中的高阶色散以及光致电离引起的高阶非线性效应对脉冲在介质中的传输过程起着不可忽略的作用.此外,我们发现脉冲自压缩现象不仅在入射激光为会聚光束时存在,在发散光束情况下同样也可以观察到,但是对应的脉冲自压缩率略低.本文的工作定性地符合了前人的理论预言,我们相信本工作对高强度飞秒激光脉冲在正色散固体介质中的传输研究能够提供非常重要实验参考和进一步的认识;另外,利用正色散固体介质实现超短脉冲自压缩的实验装置非常简单,并可用于压缩更大能量的飞秒脉冲,将很有可能代表着一种获得超短激光脉冲的新方法.

-
- [1] Chang Z, Rundquist A, Wang H *et al* 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2967
- [2] Spielmann Ch, Burnett N H, Sartania S *et al* 1997 *Science* **278** 661
- [3] Schnurer M, Spielmann Ch, Wobrauschek P *et al* 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 3236
- [4] Malka V, Fritzel S and Dangor A E 2002 *Science* **298** 1596
- [5] Kien F Le, Midorikawa K and Suda A 1998 *Phys. Rev. A* **58** 3311
- [6] Keller U 2003 *Nature* **424** 831
- [7] Shenkel B, Biegert J and Keller U 2003 *Opt. Lett.* **28** 1987
- [8] Yamane K, Zhang Z, Oka K *et al* 2003 *Opt. Lett.* **28** 2258
- [9] Hauri C P, Kornelis W, Helbing F *et al* 2004 *Appl. Phys. B* **79** 673
- [10] Rolland C and Corkum P B 1988 *J. Opt. Soc. Am. B* **5** 641
- [11] Mével E, Tcherbakoff O, Salin F *et al* 2003 *J. Opt. Soc. Am. B* **20** 105
- [12] Ryan A T and Agrawal G P 1995 *Opt. Lett.* **20** 306
- [13] Diddams S A, Eaton H, Zozulya A A *et al* 1998 *IEEE J. Quantum Electron.* **4** 306
- [14] Koprnikov I G, Suda A, Wang P *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3847
- [15] Bergé L and Couairon A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 1003
- [16] Wagner N L, Gibson E A, Popmintchev T *et al* 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 173902
- [17] Henz S and Herrmann J 1999 *Phys. Rev. A* **59** 2528
- [18] Ward H and Bergé L 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 053901
- [19] Wu Z, Jiang H B, Sun Q *et al* 2003 *Phys. Rev. A* **68** 063820
- [20] Gaeta A L 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3582
- [21] Ranka J K and Gaeta A L 1998 *Opt. Lett.* **23** 534

Self-compression of femtosecond laser pulses in normally dispersive solid material^{*}

Chen Xiao-Wei[†] Zhu Yi Liu Jun Leng Yu-Xin Ge Xiao-Chun Li Ru-Xin Xu Zhi-Zhan

(*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*)

(Received 4 January 2005 ; revised manuscript received 19 April 2005)

Abstract

We have experimentally demonstrated the self-compression of gigawatt high power femtosecond laser pulses in normally dispersive solid bulk media. It was proved that high-power femtosecond laser pulses can be compressed during the self-focusing propagation in the transparent nonlinear medium. The self-compression behavior was investigated in detail under a variety of experimental conditions, and the temporal and spectral characteristics of resulted pulses are found to be significantly affected by the input pulse intensity, with higher intensity corresponding to shorter compressed pulse. However, the output pulse is split into two peaks when the input intensity is high enough to lead to supercontinuum and conical emission. By the propagation in a piece of BK7 glass, a self-compression from 50fs to 20fs is achieved, with a compression factor of about 2.5. Moreover, we find that pulse self-compression can be achieved with a divergent input laser beam into the glass.

Keywords : ultra-short laser pulse, pulse compression, nonlinear propagation

PACC : 4265J, 5235M

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 69925513 and 19974058), and the Major Basic Research Project of Shanghai Commission of Science and Technology.

[†]E-mail: fennel_chen@siom.ac.cn