

Ar 气中超连续谱产生的研究*

张丽平 李海宁 吴 洪 李 贤 丁良恩†

(精密光谱科学与技术国家重点实验室, 华东师范大学物理系, 上海 200062)

(2007 年 3 月 15 日收到, 2007 年 6 月 6 日收到修改稿)

采用中心波长为 800 nm, 脉宽 30 fs 的超快激光在 Ar 气池中产生了 200—1000 nm 宽范围的超连续谱. 通过改变激光脉冲的初始啁啾量、单脉冲能量、气体压强以及聚焦长度等条件, 详细研究了获得稳定的超宽频谱的条件. 结果表明, 单脉冲能量为 20 mJ, 附带 $2.9 \times 10^4 \text{ fs}^2$ 正色散的啁啾脉冲用 $f = 50 \text{ mm}$ 的凹面镜在 1.5 m 长 $2.3 \times 10^5 \text{ Pa}$ 的 Ar 气中聚焦, 得到稳定的频谱宽度达 10^3 THz 的超连续谱. 还测量了光斑的远场模式, 其发散角仅为 3.1 mrad. 该结果为在可见光范围获得周期量级极端超快激光脉冲提供了极为有效的途径.

关键词: 非线性效应, 超连续谱, 初始啁啾, 光斑远场模式

PACC: 4265, 0765E, 4260H

1. 引 言

飞秒强激光脉冲在非线性介质中传输时会有较强的空间和时间调制^[1], 在频域上表现为频谱展宽. 频谱展宽的形成, 一般认为是自相位调制、四波混频和等离子通道等非线性过程共同作用的结果^[2]. 自相位调制主要是由于非线性折射率 n_2 造成的. 总的折射率 n 与激光强度 $I(t)$ 及相位 φ 的关系如下:

$$n = n_0 + n_2 I(t), \quad (1)$$

$$\varphi = kzn, \quad (2)$$

其中 k 为波数, z 为传播距离. 当入射光的强度变化时, 折射率也发生变化, 导致相位延迟也随时间发生变化, 这样就影响了光的频率 ($\Delta\omega = -\frac{d\varphi}{dt}$). 在上升翼时, $I(t)$ 随时间增大, $\Delta\omega < 0$, 频谱红移, 同理, 到下降翼时会蓝移, 频谱得到展宽.

除了自相位调制, 等离子通道中产生的自由电子也会对折射率从而对频谱产生影响. 自由电子对总折射率的作用为

$$\Delta n_e = -N_e e^2 / \epsilon_0 m_e \omega^2, \quad (3)$$

其中 N_e 为自由电子密度, e 为电子电量, ϵ_0 为真空介电常数, m_e 为电子质量, ω 为角频率. 超短强激光在非线性介质中传输时, 由于峰值功率很大(超过

10^{13} W/cm^2), 会导致气体电离, 产生自由电子, 随着时间的推移, 自由电子越来越多, $\frac{dN_e}{dt} > 0$, $\frac{dn}{dt} < 0$, $\Delta\omega > 0$, 所以自由电子的影响是使谱蓝移^[1]. 在实验中, 频谱展宽主要是在短波部分, 等离子通道的影响非常明显.

当新产生的频谱与基频光满足相位匹配时, 还会有四波混频的非线性效应使频谱得到进一步展宽.

由于超宽频谱的产生在大气污染监测及极端超快激光脉冲获得等方面有明显的应用价值, 频谱展宽的研究成为近年激光物理领域中的一个热门研究课题. 早期的实验是用 ns 或 ps 量级的激光脉冲聚焦在固体或液体样品中进行的. 直到 1986 年, 激光脉冲达到 fs 量级后, Corkum 等人^[2]才首次在气体中观察到频谱展宽现象. 现在已经可以获得频谱范围从红外覆盖到紫外的超连续谱, 如, 用中心波长为 800 nm 的基频光, Kasparian 等人^[3]获得了展宽到红外 4.5 μm 的超连续谱, 而 Nisoli 等人^[4]在光纤中获得了展宽到紫外 250 nm 附近的超连续谱, 而且用棱镜和啁啾镜压缩后获得 5 fs 以下的脉冲. 但对产生稳定超连续谱的具体条件还有待进一步研究.

本文采用中心波长为 800 nm, 脉宽 30 fs 的超快激光在 Ar 气池中产生了 200—1000 nm 宽范围的超

* 国家重点基础研究发展计划(973)项目(批准号: 2006CB806001)资助的课题.

† 通讯联系人, E-mail: jleding@phy.ecnu.edu.cn

连续谱,并且对产生超连续谱的条件,包括脉冲的初始啁啾量、单脉冲能量、气体压强和聚焦长度等做了详细的研究.

2. 实验装置

图 1 为实验装置示意图,主要由激光系统、Ar 气池和光栅光谱仪组成.其中激光是一套 10 Hz 的

Ti 蓝宝石再生放大系统,由 10 fs 的振荡源、本实验小组自行设计的共心衍射无象差展宽器^[5]、S-P 公司的放大和压缩装置 TSA-25 组成,获得了中心频率是 800 nm,脉宽 30 fs,单脉冲能量最大到 25 mJ 的激光脉冲.其频谱如图 2 所示,谱宽(FWHM)约为 55 nm. Ar 气样品池两端是以布儒斯特角切割的石英窗片.光栅光谱仪用 Acton Research 公司生产的 SpectraPro-750i 型.

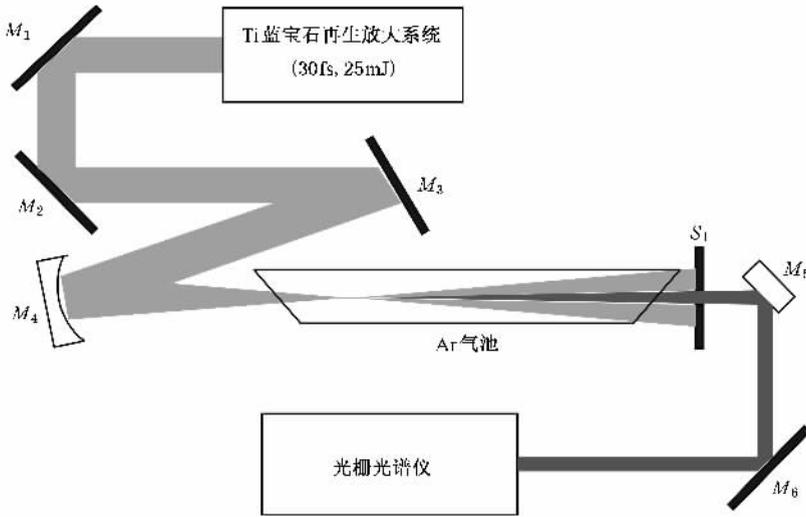


图 1 实验装置示意图

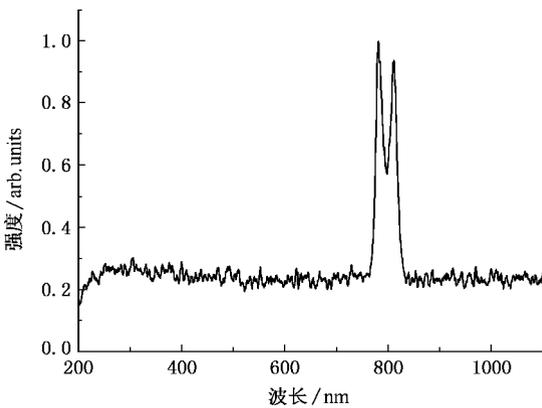


图 2 聚焦前的初始光谱

从 TSA-25 激光系统输出的光脉冲经过凹面镜 M4 聚焦后进入充以 Ar 气的样品池中,在样品池中产生等离子通道,形成了发散角很小的白斑.用光阑 S1 限定了大发散度的基频光,由不经镀膜的玻璃基片 M5 和铝镜 M6 反射,将白光引入光栅光谱仪.

3. 实验结果

3.1. 啁啾量对频谱展宽的影响

用图 1 所示的实验装置来研究啁啾量对频谱展

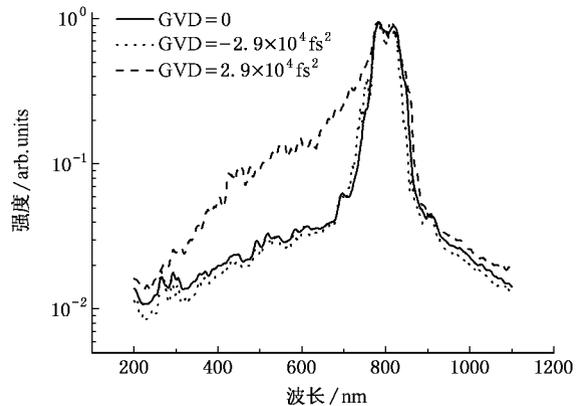


图 3 不同啁啾量对应的超连续谱

宽的影响,其中单脉冲能量为 16.8 mJ,凹面镜 M_4 的焦距为 500 mm,样品池长 1.5 m,样品池中氩气的压强为 2.3×10^5 Pa.我们通过改变压缩器中角反射器与光栅的距离,获得 GVD 分别为 $0, -2.9 \times 10^4$ 和 $+2.9 \times 10^4$ fs² 三种情况下的超连续谱,结果如图 3 所示,这里用二阶色散量来表示初始啁啾量.

实验表明,频谱展宽最好的时候不是二阶色散为零的时候,而是带一定的正色散 $GVD = +2.9 \times 10^4$ fs² 的时候,也即正啁啾有利于频谱的展宽.这个结论与理论得到的结论^[6-8]基本一致.

短脉冲在非线性介质中的传输方程为^[6-8]

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -\frac{i}{2}\beta_2 \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \frac{\sigma}{2}(1+i\omega\tau)\rho A + i\gamma|A|^2 A. \quad (4)$$

上式中右边项分别代表群速度色散、等离子体的吸收以及多光子吸收.其中 A 是入射脉冲的振幅, β_2 是群速度色散, σ 为逆韧致辐射界面, ω 为角频率, τ 是电子碰撞弛豫时间, ρ 为电子密度, γ 是非线性系数. Miao 等人^[6]把高斯型脉冲的振幅函数

$$A(0, \tau) = \sqrt{\frac{|\beta_2|}{\gamma T_0}} \exp\left(-\frac{1+iC}{2}\tau^2\right) \quad (5)$$

代入(4)式,然后用快速傅里叶变换法数值解该方程,得到了初始啁啾 C 与频谱的关系,当 $C = 0$ 时,频谱基本不变,而 $C > 0$ 时有利于频谱展宽.

3.2. 脉冲能量对频谱展宽的影响

我们用 $f = 500$ mm 的凹面镜聚焦,在 2.3×10^5 Pa, 1.5 m 长的 Ar 气中观察不同入射能量对频谱展宽的影响,能量改变是通过改变抽运光 YAG 输出的光功率来改变的,变化范围 10—20 mJ,实验结果如图 4.

可以看到,能量对频谱展宽的影响非常明显,能量越大,频谱展宽越明显.这是因为能量越大,非线性作用越强^[9],越容易形成多丝^[10],而多丝容易满足相位匹配的条件,容易形成四波混频,引起频谱展宽.

3.3. Ar 气压强的影响

将单脉冲能量为 15.4 mJ,带 2.9×10^4 fs² 二阶色散的初始脉冲用 $f = 500$ mm 的凹面镜聚焦在 1.5 m 长的 Ar 中,然后改变 Ar 气的压强,分别在 2.3×10^5 Pa 和 1×10^5 Pa 的情况下观察频谱,实验结

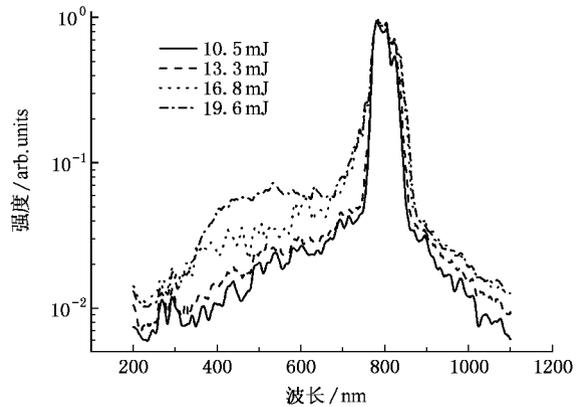


图 4 不同能量对频谱展宽的影响 (E 参数是单脉冲的能量)

果如图 5.很显然, 2.3×10^5 Pa 的 Ar 气比 1×10^5 Pa 更有利于超连续谱的产生.

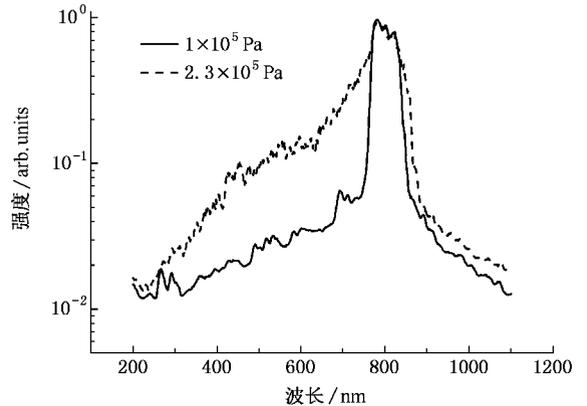


图 5 气体压强对频谱展宽的影响

3.4. 聚焦长度的影响

还研究了单脉冲能量为 20 mJ,初始脉冲带 2.9×10^4 fs² 的二阶色散时,在空气中用不同焦距的凹

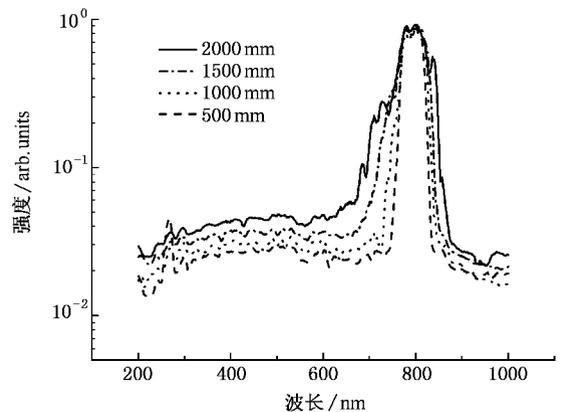


图 6 空气中不同焦距对频谱展宽的影响

面镜聚焦对频谱展宽的影响,实验结果如图 6 所示.很明显,焦距越长,频越明显谱展宽越明显.这主要是因为焦距越长,等离子通道就越长,频谱蓝移就越严重,展宽就越明显.

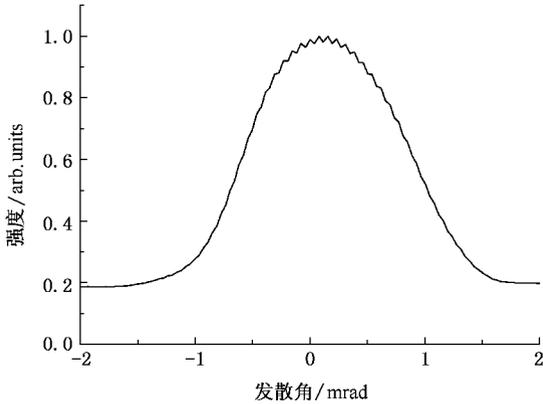


图 7 光斑的远场模式

4. 白光的远场模式测量

将 Ar 样品池产生的超连续谱作用在白屏上,在近场和远场分别用 CCD 拍照,近场与远场的距离为 207.5 cm.通过对所得的数据分析,我们得到了如图 7 所示的白光光斑上不同发散角对应的光功率,即光斑模式^[11].可以看出,它的发散角仅有 3.1 mrad.

5. 结 论

通过改变激光脉冲的初始啁啾量、单脉冲能量、气体压强以及聚焦长度等条件,研究产生稳定的超宽频谱的条件.研究结果表明,在单脉冲能量为 20 mJ,附带 2.9×10^4 fs² 色散的初始脉冲,用 $f = 500$ mm 的凹面镜在 1.5 m 长 2.3×10^5 Pa 的 Ar 气中聚焦,可以获得稳定的 200—1000 nm 宽范围的超连续谱.该结果为在可见光范围获得周期量级极端超快激光脉冲提供了极为有效的途径.

[1] Kandidov V P, Kosareva O G, Golubtsov I S, Liu W, Becker A, Akozbek N, Bowden N A, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **77** 149

[2] Corkum P B, Rolland C, Srinivasan-Rao T 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2268

[3] Kasparian J, Sauerbrey R, Mondelain D, Niedermeier S, Yu J, Wolf J P 2000 *Opt. Lett.* **25** 1397

[4] Nisoli M, Silvestri S D, Svelto O, Szpöcs R, Ferencz K 1997 *Opt. Lett.* **22** 522

[5] Hu W Y, Wang E Y, Li W X, Ding L E 2007 *Acta Opt. Sin.* **27** 181 (in Chinese) [胡婉约、王二玉、李文雪、丁良恩 2007 光学学报 **27** 181]

[6] Miao H L, Wang J, Meng J W 2003 *Spectroscopy and Spectral Analysis* **23** 38 (in Chinese) [苗洪利、王晶、孟继武 2003 光谱学与光谱分析 **23** 38]

[7] Hao Z Q, Zhang J 2004 *Physics* **33** 746 (in Chinese) [郝作强、张杰 2004 物理 **33** 746]

[8] Xiong B K, Feng Y B 2004 *Journal of Shangqiu Teachers College* **20** 26 (in Chinese) [熊宝库、冯一兵 2004 商丘师范学院学报 **20** 26]

[9] Xiang W H, Chen X W, Tan B, Zhang G Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 137 (in Chinese) [向望华、陈晓伟、谈斌、张贵忠 2004 物理学报 **53** 137]

[10] Cao Z Y, Zhang Z G, Chai L, Wang Q Y, Yang J J, Zhu X N 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2765 (in Chinese) [曹志英、张志刚、柴路、王清月、杨建军、朱晓农 2007 物理学报 **56** 2765]

[11] Nishioka H, Odajima W, Ueda K, Takuma H 1995 *Opt. Lett.* **20** 2505



Ultrabroadband continuum spectrum generated in Ar gas^{*}

Zhang Li-Ping Li Hai-Ning Wu Hong Li Xian Ding Liang-En[†]

(*State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China*)

(Received 15 March 2007; revised manuscript received 6 June 2007)

Abstract

We observed the supercontinuum in Ar during the propagation of a femtosecond pulse with wavelength of 800 nm, repetition rate of 10 Hz and pulse duration of 30 fs. We studied the supercontinuum when changing the chirp of the pulse, pulse energy, pressure in the cell and the focal length to find the optimal conditions. And we observed the steady broadest supercontinuum extending up to 200 nm with the pulse of 20 mJ energy 2.9×10^4 fs² chirps when the focal length was 500 mm and the pressure of the cell was 2.3×10^5 Pa. We measured the far-field pattern of the continuum and found the divergence angle of the white light to be 3.1 mrad.

Keywords : nonlinear effect, supercontinuum, original chirp, far-field pattern

PACC : 4265, 0765E, 4260H

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2006CB806001).

[†] Corresponding author. E-mail: leding@phy.ecnu.edu.cn