

双色场下紫外超短脉冲的频谱展宽^{*}

吴 洪[†] 王燕玲 丁良恩

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

(2009 年 7 月 31 日收到; 2010 年 1 月 22 日收到修改稿)

当共线传输的双色强激光脉冲满足时间重叠时, 其等离子体通道间将出现强烈的耦合作用, 由此引起的交叉相位调制可产生强烈的非线性效应, 使紫外超短脉冲的频谱展宽效应得到增强. 将由钛宝石激光系统经三倍频得到的能量为 0.45 mJ、带宽为 1.5 nm 的紫外脉冲和能量为 7.1 mJ 的近红外脉冲共线聚焦后, 在氩气样品池中分别诱导产生等离子体通道, 发现紫外脉冲光谱受到明显调制. 调制后的光谱半高全宽增至 6.4 nm, 为聚焦前谱宽的 4 倍, 是单束紫外脉冲成丝时谱宽的 2.5 倍. 实验着重研究在不同时间延迟、耦合位置和气体压强情况下, 双色光丝在氩气中的紫外频谱演化规律, 为紫外波段极端超快激光脉冲的获得提供了有效依据.

关键词: 紫外超快脉冲, 双色光丝, 非线性效应, 光谱展宽

PACC: 4265K, 3320L, 4260H

1. 引 言

高强度飞秒激光脉冲在透明介质(固体、液体和气体)中传输时, 会引起复杂的非线性现象, 从而导致脉冲特性在时域及频域上的很大变化^[1]. 在频域上主要表现为频谱展宽, 所产生的超连续光谱可用于光谱分析^[2]或激光雷达^[3]中; 而在时域上则表现为周期量级超短脉冲的产生, 对于成为新的高次谐波驱动源具有指导意义. 近年来, 在超快强场激光诱导条件下, 气体介质中克尔自聚焦与自散焦动力学平衡所形成的等离子体通道(又称光丝)备受关注^[4-6], 被认为是产生超短脉冲的一种有效途径^[7-15]. 迄今为止, 科研工作者们已对高强度飞秒激光脉冲在气体中的成丝过程进行了很多细致的研究, 包括如何对等离子体通道和由其产生的白光进行控制^[6], 以及啁啾^[16]、能量、气压、光束性质^[17]、空间整形^[18,19]等各因素的影响. 研究工作还进一步扩展到不同波段激光脉冲产生的等离子体通道方面, Kolesik 等^[20]提出了利用双色激光脉冲诱导等离子体来控制光谱及等离子体传输的理论. 此外, 双色光丝中存在的四波混频效应能产生更强和更宽的超连续光谱, Fuji 等在氩气中实现了 12 fs 的深紫外波段脉冲宽度^[7], 在空气中则实现了低于

两个光学周期的中红外波段脉冲宽度^[11].

最近, Béjot 等^[21]报道了共线双色场成丝的光谱展宽理论和实验研究, 他们使用 800 nm 的超短脉冲及其 400 nm 倍频光, 由单个透镜在氩气中共线聚焦成丝. 在时空重合的条件下, 双色光场及其等离子体通道间出现强烈的耦合作用, 产生了很强的非线性效应. 除单光束成丝过程中存在的自相位调制、等离子体作用等因素外, 他们还发现双色光场间的交叉相位调制效应可使 400 nm 倍频光的谱宽得到显著加宽.

本文着重研究超快紫外激光脉冲在近红外强场诱导下产生的等离子体通道间的相互影响, 实验考察了在不同时间延迟、光丝耦合位置和气体压强情况下, 紫外脉冲受到的光谱调制情况以及光丝的变化规律. 研究表明, 双色场交叉相位调制增强了紫外激光脉冲单光束成丝的自相位调制频谱展宽效应, 为紫外波段的极端超快脉冲产生提供了一种有效途径.

2. 双色场光丝相互作用

单束激光成丝过程中因存在着自相位调制、四波混频等非线性效应, 能使飞秒脉冲光谱得到一定程度的展宽. 我们分析对展宽有重要贡献的自相位

^{*} 国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB806001)和上海市重点学科建设基金(批准号:B408)资助的课题.

E-mail: acton008@yahoo.cn

调制,由克尔效应引起的总折射率 $n = n_0 + n_2 I(t)$ 、相位 $\varphi = kzn$ 和最终光频率 $\Delta\omega = -d\varphi/dt$ 可以看出,相位调制的大小与非线性折射率 n_2 、光强度 $I(t)$ 以及光纤有效作用距离 z 密切相关. 由于成丝过程中光强钳制^[22,23]的影响难以使 $I(t)$ 增加,故人们通常都采用长焦聚焦镜来增加相互作用距离,或提高气体压强来增加非线性折射率等方法^[24]加强谱线展宽,但这些手段都受到单光束成丝的光强限制. 而对于两个不同波段的超短脉冲共线传输并在气体中聚焦成丝的情况,除自相位调制外,还存在着交叉相位调制现象. 当两个不同频率的强激光脉冲在非线性介质中共同传输时,将各自引起介质的非线性折射率变化并造成对另一频率的交叉相位调制,这有效地增强了飞秒激光脉冲的频谱展宽效应. 双色场下,紫外波段的非线性折射率可写为^[21]

$$n_{\text{nonlinear}} = n_2^{\text{UV}} |\varepsilon^{\text{UV}}|^2 + n_{\text{cross}} |\varepsilon^{\text{IR}}|^2.$$

这里 n_2^{UV} 是紫外波段对应的非线性克尔系数, $n_2^{\text{UV}} \approx 5.2p \times 10^{-24} \text{ cm}^2/\text{W}$ ^[25], 其中 p 是气压,以 Pa 为单位; n_{cross} 是交叉克尔效应对应的非线性克尔系数,在正常色散区为正值,且在一定范围内与气压成正比; $|\varepsilon^{\text{UV}}|^2$ 和 $|\varepsilon^{\text{IR}}|^2$ 分别为紫外波段和红外波段的光强包络函数. 由此可见,改善双色强场区域的时空重叠是提高光谱展宽量 $\Delta\omega$ 的关键.

在成丝情形下,由于双色光场强区的分布相对于几何焦点位置发生改变,因此光场的空间耦合位置需要重新调整,实验中通过平移紫外聚焦装置实现. 此外,高压下对应的克尔系数较大,这同样影响到了光谱展宽的结果.

在本文中,我们通过改变双光束之间的延时、光纤耦合位置和背景压强等参量条件,对紫外激光脉冲光谱的频谱调制进行了详细研究,实验获得了半高全宽达 6.4 nm 的紫外强激光脉冲输出.

3. 实验装置

实验装置如图 1 所示,激光光源为改造过的 TSA-25 型商用钛蓝宝石飞秒激光系统,它由脉冲宽度为 10 fs 的振荡源、自建展宽器^[26]和原系统中的放大器及压缩器组成. 系统可输出重复频率为 10 Hz、中心波长为 810 nm、脉冲宽度为 70 fs 的水平偏振激光脉冲,其单脉冲能量约为 17 mJ,光斑直径约为 12 mm. 激光束首先经口径为 10 mm、厚度为 0.2 mm、切割角为 29.2° 的非线性 β 型硼酸钡晶体 BBO1 倍频,产生 405 nm 的竖直偏振倍频光. 然后由另一口径 10 mm、厚度 0.2 mm、切割角为 44.3° 的 β 型硼酸钡晶体 BBO2 进行和频,产生水平偏振的 271 nm 三次谐波,其光谱宽度约为 1.5 nm,采用双光子荧光方法测得相应脉冲宽度约为 200 fs. 通过两块晶体后的输出光束包含了 271 nm 的三次谐波、剩余 405 nm 的倍频波和 810 nm 的基波,其中 271 和 810 nm 的光束均为水平偏振. 实验中利用双色镜 DCM1 对此混合光进行分束,一束为 271 nm 的反射光,另一束为 810 和 405 nm 的透射光,透射光束再经过若干近红外高反镜 M_7-M_{11} ,以滤去 405 nm 波段,最终可得到能量为 7.1 mJ 的近红外基波和 0.45 mJ 的紫外三次谐波. 此处的能量损失较为严重,一方面是由于 BBO 晶体口径的限制,另一方面则是受晶体表面膜系反射的影响. 我们将紫外和近红外两束光分别经焦距为 750 和 500 mm 的凹面镜 M_5 和 M_{12} 聚焦,再由双色镜 DCM2 合束,最后共同注入到长度为 0.8 m、压强约为 0.2 MPa 的氩气样品池中. 实验中两凹面镜焦点位置预调整为大致空间重叠,以保证两激光脉冲成丝的强区位置足够接近,能够发生非线性耦合. 使用凹面聚焦镜可避免因透镜而引入

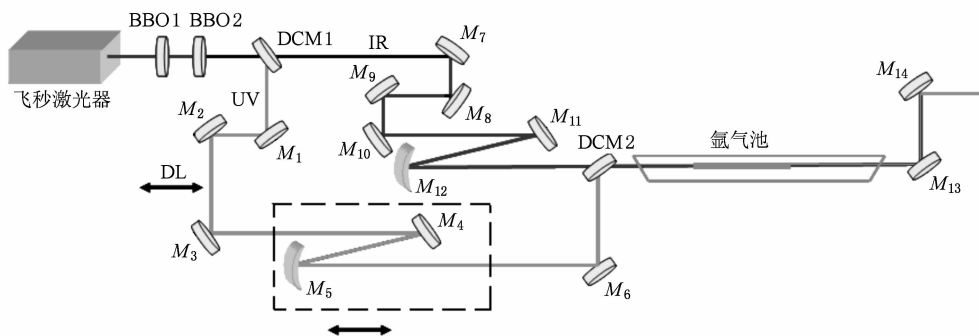


图 1 实验装置示意图

的材料色散. 我们将 271 nm 紫外光束的 0° 高反镜 M_4 和聚焦镜 M_5 安装在同一平移台上, 从而可以准确控制两光的空间耦合位置. 实验中确定零延迟点的方法是在合束后插入一块 0.2 mm 厚的 BBO 晶体, 产生最强 405 nm 差频信号的位置即为零延迟, 其中两光脉冲间的精确延迟由紫外光路中的精密步进电机 DL 控制. 氩气样品池采用布儒斯特角切割的石英窗片, 以保证透射光最强. 从样品池窗口出射的激光脉冲依次经过两个紫外波段高反镜 M_{13} 和 M_{14} , 以滤去其中的红外基波, 然后通入 HR2000 型光纤光谱仪进行紫外光谱测量.

4. 实验结果及讨论

实验中, 将能量为 7.1 mJ 的近红外光束和 0.45 mJ 的紫外光束聚焦后, 单独注入到压强约为 0.2 MPa 的氩气样品池中, 均可以产生清晰的光丝, 其中红外光丝的可见部分只有 2 cm 长, 紫外光丝的可见部分为 6 cm. 当将两束光共同作用于氩气并调节至两光丝时空均重合时, 可以发现样品池中光丝长度增加为 8 cm, 且整个丝都显著明亮. 这意味着双色脉冲相互作用的有效距离变长并且光强度增加, 非线性效应增强.

4.1. 时间延迟对频谱的影响

在单光束成丝的情形下, 光谱展宽主要来自于中性原子和弱等离子体通道中的自相位调制; 在双色光束情形下, 附加的交叉相位调制效应会使激光脉冲的时空演化及相应的光谱调制更为复杂. 图 2 曲线 *a* 为双色激光脉冲在时间上完全错开时的紫外光谱, 此时双色光场间不存在相互作用, 紫外光谱中心在 271.3 nm 处, 谱宽约为 2.6 nm, 相对于聚焦前 1.5 nm 的紫外光谱宽度, 单光束成丝使其增加了 1.1 nm. 当两脉冲在时域上重叠时, 受近红外光的调制作用, 紫外光谱发生了明显变化. 具体变化情况如图 3 所示, 其中横坐标表示波长, 纵坐标表示两脉冲光之间的时间延迟. 我们约定, 当紫外光超前于近红外光时, 时间延迟为正, 滞后则为负. 从图 3 可以看出, 在零延迟点附近 (-120 — 180 fs) 约 300 fs 范围内, 光谱随时间延迟的不同发生了显著变化, 这与近红外脉冲约 70 fs, 紫外脉冲约 200 fs 的脉冲宽度基本符合. 在此范围之外正负方向各有 160 fs 的区域内, 可以观察到光谱有较弱的变化, 这应归

结于紫外和近红外脉冲较大的基底. 这部分能量虽然不高, 但延迟变化时它们之间的相互作用仍然对紫外光谱有少量调制作用. 在紫外脉冲光谱受到明显调制的区域中, 零延迟点对应的双色光场时间重叠最好, 非线性耦合效应最明显, 因而对应着紫外光谱调制最大的位置. 此时紫外光谱宽度达 5.3 nm, 并呈双峰结构, 光谱中心位于 272.7 nm 处, 如图 2 曲线 *b* 所示.

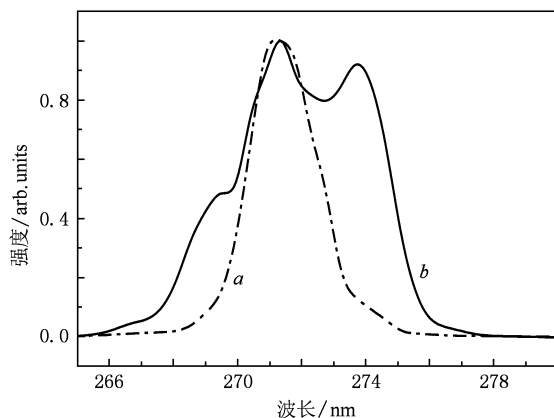


图 2 紫外光谱

一般认为在成丝过程中, 脉冲前沿导致光谱向长波方向展宽, 而后沿则导致光谱向短波方向展宽^[27]. 因此, 当变动延迟使得红光超前时 (负延迟), 紫外脉冲前沿受到的交叉相位调制较为显著, 故而紫外频谱展宽主要体现在长波方向 (图 3 中 -120 — -60 fs), 短波方向展宽则并不十分明显. 而当红光滞后时 (正延迟), 紫外脉冲后沿承受着主要的交叉相位调制, 因此短波段的光谱展宽较为显著 (图 3 中 60 — 120 fs), 但此时其长波段的展宽也比较明显, 此现象同文献[21]所述类似, 其机理仍有待进一步研究.

4.2. 光丝耦合位置的影响

将紫外/红外波段聚焦镜预调节为几何焦点重合时, 实验中两个波段单独成丝的起止位置并不一致. 在压强约为 0.2 MPa 的氩气样品池中, 近红外脉冲在焦点前约 2 cm 成丝, 在焦点位置截止, 丝长约为 2 cm, 亮度很高. 而紫外光丝则在焦点前 8—2 cm 范围内成丝, 长度约为 6 cm, 亮度较弱, 两者的空间强区并不重合. 当使两束光共同作用于氩气并调节至两脉冲时空均重合时, 可以发现样品池中光丝相互连接, 长度增加为 8 cm, 且整个丝都显著明亮. 此

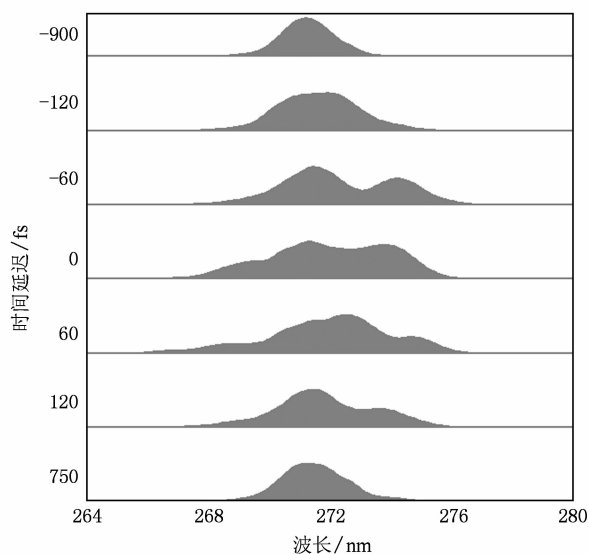


图3 紫外光谱随时间延迟的变化

时两独立激光场产生的光丝空间耦合并不简单参照于焦点的重合.

不同的初始条件以及氩气中各波段自聚焦阈值功率、多光子电离速率等成丝参量的差异^[4],是造成紫外/红外脉冲成丝位置差别的主要原因.在双脉冲耦合的条件下,光场强度的分布更为复杂,几何焦点的重合不能保证双色脉冲空间强区的交叠.这里,我们着重研究紫外光谱受较大调制情况下,频谱随着焦点位置移动的演化规律.实验中将 0° 紫外高反镜 M_4 和聚焦镜 M_5 置于平移台上,用于改变样品池中紫外光的焦点位置,从而调节双色脉冲的耦合情况. M_4 和 M_5 (从而紫外脉冲的几何焦点位置)逐渐向后(图1右侧)移动,每2 mm记录一次,测量范围共为1.2 cm,对应光谱如图4所示.从图4可以看出,当紫外几何焦点后移量为2和4 mm时,长波方向展宽较多.这种情况下,时间同步的双脉冲中依然是紫外光(空间上)先拉丝,而近红外光后拉丝,在交叠部分近红外光等离子体效应较弱,交叉相位调制相对起主要作用,对紫外光谱的调制则主要体现在长波方向.随着紫外几何焦点位置继续后移(图4中6,8 mm处的光谱),短波方向逐渐有了较大增宽,延伸至268 nm,这主要是因为紫外光丝越向后,距离近红外光丝就越近,近红外光形成的等离子体对紫外光的散焦作用就更明显,因而短波方向的展宽较多.当紫外几何焦点后移达8,10 mm时,频谱展宽最为明显,谱宽达到约6.4 nm.相对于单束紫外激光诱导等离子体通道展宽时的2.6

nm,双色光丝的相互作用使其又增至2.5倍,为入射紫外光谱的4倍.此时应为双色光丝强区空间重叠最好的情况,非线性相互作用最强.从图4可知,紫外几何焦点后移10 mm时,光谱宽度达到最大;焦点继续右移4 mm后,光谱调制消失,表明紫外焦点靠前比靠后对光谱的调制更明显.

此外,随着紫外激光聚焦位置的不断后移,可观察到单束紫外光丝的位置也随之后移约1 cm,长度则基本维持在6 cm左右;而在两脉冲光之间相互耦合、光谱受到调制的范围内,总能观察到光丝长度相对于单束成丝有所增加,约为8 cm.实验中当两束光丝的亮区分离时,可以区分亮度较弱的紫外光丝和较强的红外光丝.而当两光丝强区接触时,则观察到整个光丝亮度显著提高,直至两光丝再度分离,相互作用结束.

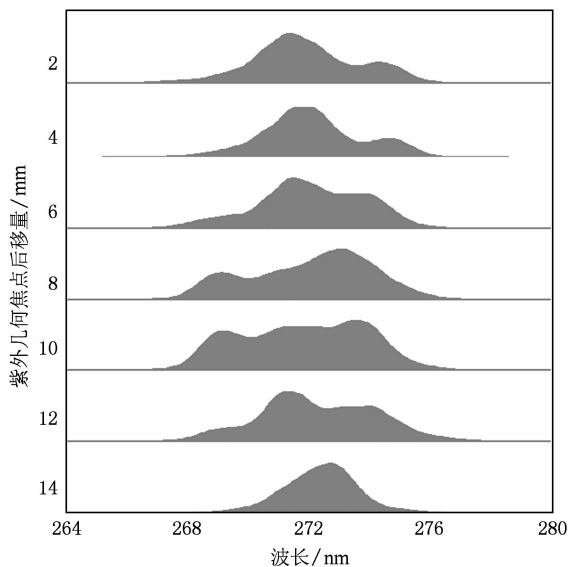


图4 紫外光谱随耦合位置的变化

4.3. 压强的影响

对于单束超快激光在气体中成丝的情形,其谱宽受压强因素的影响已有不少报道.文献[24]指出,压强增大时,光丝的长度、亮度和光谱展宽量也随之增加.与此类似,当双色光丝在氩气样品池中中共线传输时,其光谱调制作用也受到气压的影响.图5为氩气池压强在0.02—0.2 MPa范围内测量到的紫外光谱.从图5可以看出:在0.02 MPa处,谱宽约为2.6 nm,中心在271.6 nm处;在0.18 MPa处,光谱宽度增至5.3 nm,呈现双峰结构,谱中心位置在272 nm处;压强升高到0.2 MPa

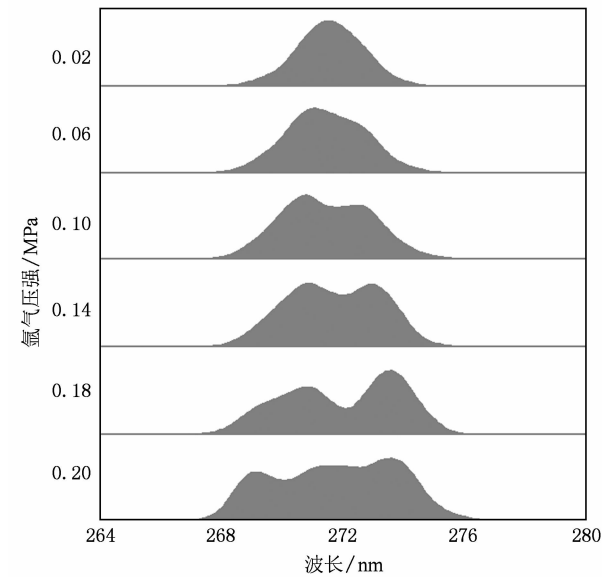


图5 紫外光谱随气压的变化

时,光谱宽度进一步增加至 6.4 nm 左右,基本为平顶谱型.由此可知,随着压强的不断增加,紫外光谱向长波和短波方向均有较明显的展宽.这里主要是因为气体压强升高时,非线性系数随之加大,导致非线性效应加强,由自相位调制和交叉相位调制引起的光谱展宽也就更加显著.

5. 结 论

使用中心波长为 810 nm 的近红外和 271 nm 的紫外超快激光脉冲,在压强为 0.2 MPa 的氩气样品池中共线聚焦时可分别产生等离子体通道.当此双色脉冲在时域和空间上交叠时,两等离子体通道间存在着非线性耦合作用.受交叉相位调制的影响,双脉冲耦合下的光丝长度有所延长,同时紫外光谱的展宽比单光束成丝情形下更显著.本实验重点研究了改变时间延迟、聚焦位置和气体压强情况时,紫外频谱调制及光丝的变化规律.实验发现,当双色脉冲时间上为零延迟且光丝强区的空间重叠最佳时,紫外光谱宽度可从无相互作用时的 2.6 nm 展宽至 6.4 nm,增加到原来的 2.5 倍,理论上可支持小于 20 fs 的脉冲宽度.采用紫外双光子荧光方法,测得此时紫外脉冲宽度约为 50 fs,采用啁啾补偿措施后可望使脉冲宽度得到进一步压缩.在本实验中,紫外脉冲的频谱得到了较多展宽,为获取该波段小于 20 fs 的超快脉冲提供一个重要途径,在强场物理和阿秒科学的发展中具有一定的参考价值.此外,实验中双色光丝的等离子体通道得到了延长,也为高压放电和诱导闪电等应用提供了较好的方法.

[1] Chen X W, Liu J, Zhu Y, Leng Y X, Ge X C, Li R X, Xu Z Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3665 (in Chinese) [陈晓伟、刘军、朱 毅、冷雨欣、葛晓春、李儒新、徐至展 2005 物理学报 **54** 3665]

[2] Brixner T, Damrauer N H, Niklaus P, Gerber G 2001 *Nature* **414** 57

[3] Kasparian J, Rodriguez M, Mejean G, Yu J, Salmon E, Wille H, Bourayou R, Frey S, Andre Y B, Mysyrowicz A, Sauerbrey R, Wolf J P, Woste L 2003 *Science* **301** 61

[4] Couairon A, Mysyrowicz A 2007 *Phys. Rep.* **44** 47

[5] Cao S Y, Song Z M, Qin Y, Wang Q Y, Zhang Z G 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3971 (in Chinese) [曹士英、宋振明、秦 瑀、王清月、张志刚 2009 物理学报 **58** 3971]

[6] Kasparian J, Wolf J P 2008 *Opt. Express* **16** 466

[7] Fuji T, Horio T, Suzuki T 2007 *Opt. Lett.* **32** 2481

[8] Zair A, Guandalini A, Schapper F, Holler M, Biegert J, Gallmann L, Couairon A, Franco M, Mysyrowicz A, Keller U 2007 *Opt. Express* **15** 5394

[9] Trushin S A, Kosma K, Fuss W, Schmid E 2007 *Opt. Lett.* **32** 2432

[10] Chen X, Li X, Liu J, Wei P, Ge X, Li R, Xu Z 2007 *Opt. Lett.* **32** 2402

[11] Fuji T, Suzuki T 2007 *Opt. Lett.* **32** 3330

[12] Hauri C P, Kornelis W, Helbing F W, Heinrich A, Couairon A, Mysyrowicz A, Biegert J, Keller U 2004 *Appl. Phys. B* **79** 673

[13] Couairon A, Biegert J, Hauri C P, Kornelis W, Helbing F W, Keller U, Mysyrowicz A 2006 *J. Mod. Opt.* **53** 75

[14] Couairon A, Franco M, Mysyrowicz A, Biegert J, Keller U 2005 *Opt. Lett.* **30** 2657

[15] Hauri C P, Guandalini A, Eckle P, Kornelis W, Biegert J, Keller U 2005 *Opt. Express* **13** 7541

[16] Wille H, Rodriguez M, Kasparian J, Mondelain D, Yu J, Mysyrowicz A, Sauerbrey R, Wolf J P, Woste L 2002 *Eur. Phys. J. : Appl. Phys.* **20** 183

[17] Skupin S, Bergé L, Peschel U, Lederer F, Mejean G, Yu J, Kasparian J, Salmon E, Wolf J P, Rodriguez M, Woste L, Bourayou R, Sauerbrey R 2004 *Phys. Rev. E* **70** 046602

[18] Walter D, Eyring S, Lohbreier J, Spitzenpfeil R, Spielmann C 2007 *Appl. Phys. B* **88** 175

