

亚 10 fs 激光脉冲产生中的受激拉曼散射与 四波混频效应*

邓 莉^{1)†} 孙真荣¹⁾ 林位株²⁾ 文锦辉²⁾

1) 华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

2) 中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

(2007 年 12 月 27 日收到, 2008 年 8 月 28 日收到修改稿)

自行搭建的自锁模钛宝石激光器工作在下稳区的上边界附近, 采用熔融石英棱镜对在激光器谐振腔的腔内和腔外同时进行群速度色散补偿. 随着腔内棱镜对提供色散补偿的变化, 输出激光脉冲的频谱会突然展宽至 664—840 nm, 其空间模式也由基横模变化至衍射环状结构, 这是受激拉曼散射和四波混频效应导致锁模激光脉冲频谱进一步展宽的结果. 在此状态下自锁模钛宝石激光器可实现 670—865 nm 范围的波长调谐. 如此宽的频谱为钛宝石激光器产生亚 10 fs 激光脉冲提供了必要的条件.

关键词: 飞秒激光脉冲, 受激拉曼散射, 四波混频, 群速度色散

PACC: 4260F, 4260H, 4265C, 4265M

1. 引 言

自锁模钛宝石激光器具有结构简单、体积较小、运行稳定、费用相对低廉等特点, 是目前世界上应用最为广泛的产生亚 10 fs 激光脉冲的主要设备之一. 自锁模钛宝石激光器能获得飞秒脉冲关键是展宽脉冲频谱和精确控制群速度色散. 展宽频谱要求自锁模钛宝石激光器处于锁模状态, 通过优化腔横模调制、谐振腔的光学稳定性和频率依赖腔模效应可以产生频谱较宽的激光脉冲. 选用短的钛宝石棒和三阶群速度色散系数小的石英、氟化钙棱镜对^[1-4]或采用宽带啁啾反射镜作为群速度色散补偿器等^[5-8]方法, 可有效压缩激光脉冲宽度. 为了能使钛宝石激光器实现自锁模, 一些研究小组通常使钛宝石激光器工作在上稳区的下边界附近, 在短臂区端镜附近放置硬光阑产生损耗调制^[7-11]. 本工作所采用自行搭建的钛宝石激光器工作在下稳区的上边界附近, 具有增益饱和和效应弱、增益较高、频率依赖腔模效应较弱等优点, 利用增益介质的软光阑效应在较低连续功率时就可实现锁模且频谱较宽. 在激光器谐振腔的腔内和腔外采用熔融石英棱镜对同时进

行补偿. 随着腔内棱镜对色散补偿的增加, 输出的激光脉冲频谱会突然展宽至 664—840 nm, 其空间模式也从基横模突然变化至衍射环状结构, 这是受激拉曼散射和四波混频效应导致锁模激光脉冲的频谱进一步展宽的结果. 仔细调节腔外棱镜对的色散补偿量即可获得 8.5 fs 激光脉冲.

2. 实验装置和实验结果

实验所用的自锁模钛宝石飞秒激光器结构的子午面视图如图 1 所示. 我们采用 X 型四镜折叠腔结构, 选用的掺钛蓝宝石激光晶体品质因子大于 250, 两端面以 Brewster 角切割以减小增益介质表面损耗并使激光成为线偏振光, 晶体光轴位于水平面内并与棒轴垂直. 通光方向上的钛宝石晶体长度 L 为 5 mm, 激光中心波长为 800 nm 时所对应的线性折射率 n_0 为 1.76. 钛宝石晶体置于两个球面反射镜 M_1 和 M_2 组成的亚腔内, 采用氩离子激光全线抽运, 抽运光由透镜 F 会聚后经双色镜 M_2 入射到钛宝石晶体中. 两折叠镜 M_1 和 M_2 是双介质膜, 对抽运光有大于 90% 的透射率. 折叠镜 M_1 和 M_2 曲率半径 R 均为 102 mm, 折叠角 2θ 为 15° , 它们在子午面

* 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号 20050269011)资助的课题.

† E-mail: ldeng@phy.ecnu.edu.cn

(tangential plane) t 和弧矢面(sagittal plane) s 上的有效焦距分别为 $f_t = R \cos \theta / 2$ 和 $f_s = R / (2 \cos \theta)$, 两个折叠镜到邻近的钛宝石棒表面 S_1 和 S_2 的距离分别为 $\overline{S_1 M_1} = l_1$ 和 $\overline{S_2 M_2} = l_2$, 亚腔长度及激光棒的位置可以微调. 两个端镜 M_3 和 M_4 是平面镜, 其中 M_4 是全反镜, 在 650—850 nm 范围内有平坦的反射特性, 反射率在 99.8% 以上, M_3 为输出耦合镜, 在其中心波长 800 nm 处的透过率为 4% 左右. 谐振腔的两个臂长为 $\overline{M_4 M_1} = l_4$ 和 $\overline{M_3 M_2} = l_3$, 长度分别为 930 和 540 mm, 总的谐振腔长约为 1500 mm. P_1, P_2 为石英棱镜对用以补偿谐振腔内群速度色散, 其尖端间距 l_p 为 600 mm. 图 1 中的 D 为一条沿光束传输的垂直方向上移动的狭缝, 调节狭缝插入光束的位置, 可实现对锁模激光脉冲的波长调谐. 钛宝石激光器由氙离子激光器全线抽运, 整个激光系统固定在防震防尘的工作平台上. 为使氙离子激光器的功率和光束方向稳定, 我们采用自行研制的自动微调光学准直器来驱动氙离子激光器的一个端镜, 使钛宝石激光器获得最佳的功率输出, 同时也提高了锁模质量. 将一小部分光引入到单色仪中, 经 CCD 显示频谱展宽情况, 其中心波长可由单色仪直接读出.

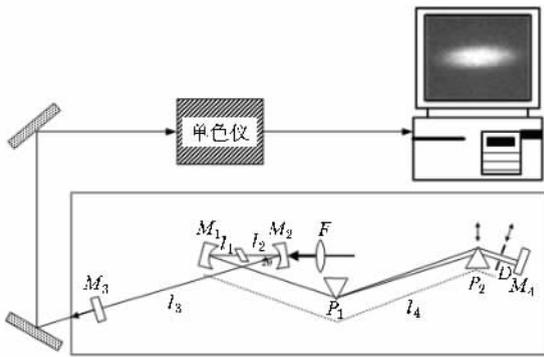


图 1 自锁模钛宝石飞秒激光器结构的子午面视图

激光器亚腔处在下稳区的上边界 $l_1 + l_2 = 102.8$ mm, 调节晶体位置, 使 $l_1 \approx 52.8$ mm, 腔内连续功率为 50 mW 时, 激光空间模式为基横模, 如图 2 所示. 沿双箭头所示方向迅速推动棱镜 P_2 改变插入光束的位置即可锁模, 锁模功率可达 152 mW, 中心波长为 790 nm, 轻微调节钛宝石晶体位置或端镜 M_4 的俯仰, 可实现锁模激光中心波长在 780—810 nm 附近的调谐. 如图 1 所示, 由于光束经棱镜 P_1 空间上展开后, 短波成分靠近 P_2 的尖端, 继续推动 P_2 增大棱镜相对插入量使短波的衍射损耗成分减少,

更多短波成分进入棱镜并参与激光振荡, 使得锁模激光脉冲的中心波长向短波方向移动, 频谱加宽且中心波长移至 775 nm (图 3(a)), 空间模式仍为基横模 (图 3(b)). 继续向光束方向推进棱镜, 频谱突然展宽 (图 4(a)) 波长范围从 664 nm 延伸至 845 nm (图 4(b)), 锁模功率升至 180 mW 后空间模式出现环状结构, 频谱出现双峰结构, 这是激光脉冲相同频率成分不同时间相干的结果^[12, 13]. 由于 CCD 分辨率不高, 只能观察到光斑周围有大片光晕 (图 4(c)). 将输出激光经透镜扩束后, 可以观察到很亮的中间光斑周围有明显的环状结构, 如图 4(d) 所示.

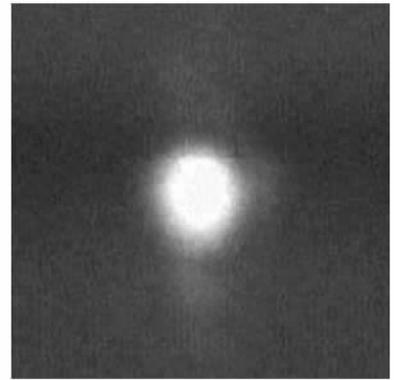


图 2 激光器工作在下稳区上边界时输出激光脉冲的空间模式

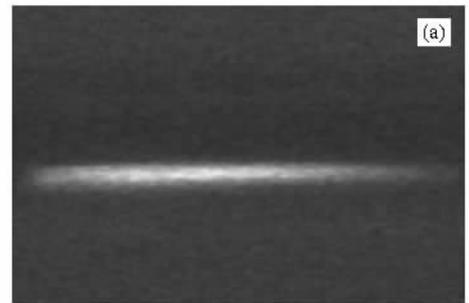


图 3 激光器工作在下稳区上边界且中心波长为 775 nm 时输出激光脉冲的图像 (a) 经过单色仪后 CCD 显示的图像 (b) 空间模式

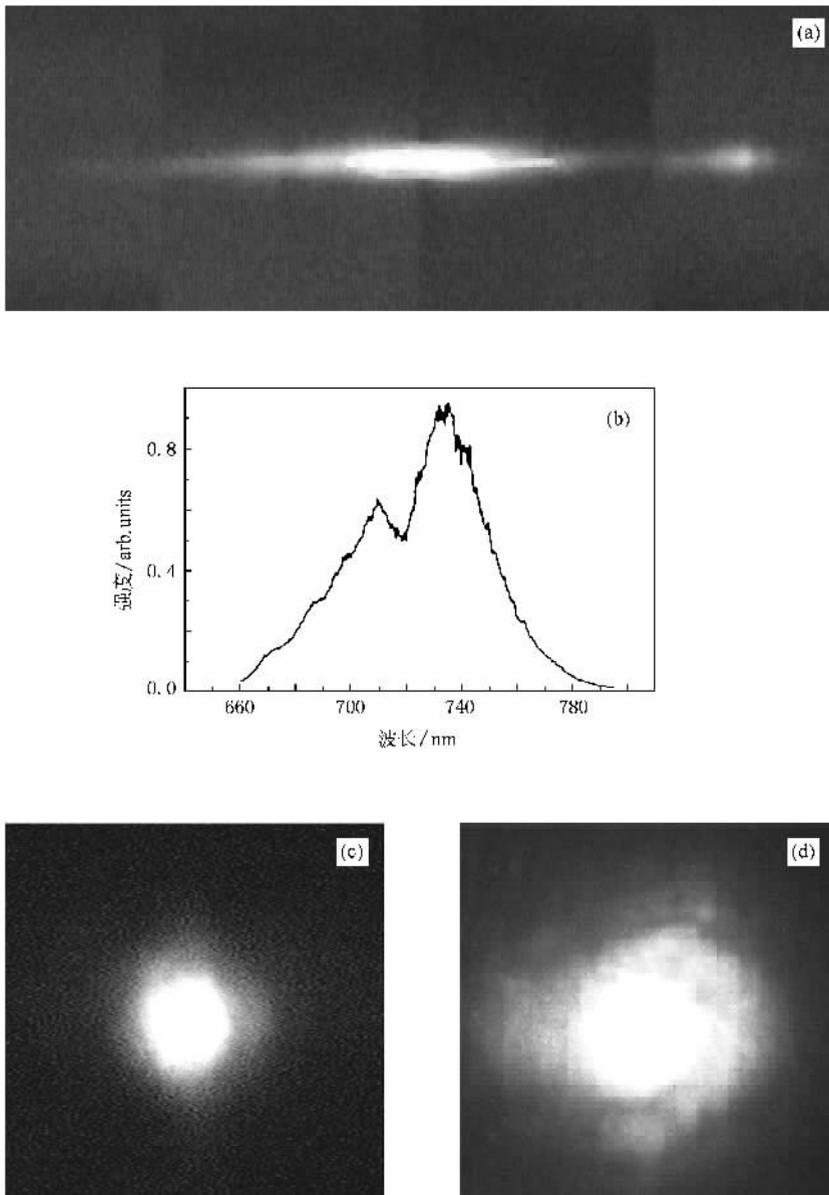


图4 激光器工作在下稳区上边界且中心波长为 733 nm 时锁模激光脉冲图像 (a)经过单透镜后 CCD 显示的图像 (b)单色仪扫描的激光脉冲功率频谱 (c)空间模式 (d)经扩束后的空间模式

3. 讨论与分析

随着激光器谐振腔内棱镜对提供色散补偿的变化,输出激光脉冲频谱会突然展宽,其光斑空间模式也由基横模变化成衍射环状结构,此实验现象的出现主要是受激拉曼散射和四波混频两种效应共同作用的结果.起初引起频谱增宽的主要原因是自相位调制.由于棱镜 P_2 相对光束插入量增大,棱镜对 P_1, P_2 的间距增大,棱镜对提供的二阶负群速度色

散也随之增大,使激光脉冲的线性啁啾得到补偿,激光脉冲的时域宽度减小、峰值功率增加,自相位调制引起的激光脉冲频谱加宽.仅仅是自相位调制效应,锁模激光脉冲的频谱不可能瞬间获得如此大的展宽,而且光斑空间模式形成环状结构,因此还存在其他效应.

对于上述实验现象,可做如下分析:若激光器连续运转时为 TEM_{00} 模式(参见图 2),则激光器锁模时也不会出现高阶横模,应该排除环状结构由高阶模产生的可能.随着棱镜对 P_1, P_2 间距的增大,激光

脉冲时域宽度变窄、峰值功率增大,超过增益介质钛宝石晶体受激拉曼散射的阈值后产生受激拉曼散射.拉曼散射在各向同性介质内散射方向是均匀的,但是沿其他方向传输的散射光增益长度较短,很难形成散射光子的雪崩式放大,只有沿着与入射光束同方向或反方向传输的散射光波才与散射介质有最大的相互作用长度(增益长度)^[14].由于入射激光脉冲持续时间很短(飞秒量级),后向散射的最大增益距离远远小于前向受激拉曼散射.因此,前向拉曼散射将优先产生,而后向拉曼散射则不一定能有效产生.抽运光与前向一级斯托克斯受激拉曼散射光在增益介质中相互作用产生拉曼共振增强的三阶非线性极化波,导致一级反斯托克斯和二级斯托克斯受激拉曼散射光的出现,其光强可由以下公式表示:

$$P(\omega_{AS1}, \mathbf{r}) = 3\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p, \omega_{S1}, \omega_{S2}, -\omega_{S2}) \hat{\chi}(\omega_p) \times \hat{\alpha}(\omega_{S1}) \hat{\chi}(\omega_{S2}) E(\omega_p) E(\omega_{S1}) E^*(\omega_{S2}) \times \exp[i(\mathbf{k}_p + \mathbf{k}_{S1} - \mathbf{k}_{S2}) \cdot \mathbf{r}], \quad (1)$$

$$P(\omega_{S2}, \mathbf{r}) = 3\epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_p, \omega_{S1}, -\omega_{AS1}) \hat{\alpha}(\omega_p) \hat{\alpha}(\omega_{S1}) \times \hat{\alpha}(\omega_{AS1}) E(\omega_p) E(\omega_{S1}) E^*(\omega_{AS1}) \times \exp[i(\mathbf{k}_p + \mathbf{k}_{S1} - \mathbf{k}_{AS1}) \cdot \mathbf{r}], \quad (2)$$

式中 ϵ_0 为真空介电常数, $\chi^{(3)}$ 为三阶非线性极化率, \mathbf{k} 为波矢, ω 为激光频率, $E(\omega) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \hat{\alpha}(\omega)$ 表示光场矢量, $E^*(\omega) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \hat{\alpha}(\omega)$ 表示光场矢量的共轭,下标 S1 表示一级斯托克斯受激拉曼散射光, S2 表示二级斯托克斯受激拉曼散射光, AS1 表示一级反斯托克斯受激拉曼散射光, p 表示抽运光.由(1)(2)式可知,只有满足下列相位匹配条件时一级反斯托克斯受激拉曼散射光和二级斯托克斯受激拉曼散射光才能有效产生:

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_p + \mathbf{k}_{S1} - \mathbf{k}_{S2} - \mathbf{k}_{AS1} = 0. \quad (3)$$

根据图 5 有

$$k_{AS1} \cos \theta'_1 - k_p = k_{S1} - k_{S2} \cos \theta_2, \quad (4)$$

式中 θ'_1 为一级反斯托克斯光方向与抽运光方向之

间的夹角, θ_2 为二级斯托克斯光方向与抽运光方向之间的夹角.根据能量守恒 $\omega_{S2} = \omega_p + \omega_{S1} - \omega_{AS1}$ 和余弦定理可以计算得到 θ'_1, θ_2 的值.一级反斯托克斯光和二级斯托克斯光沿着与入射光方向成 θ'_1, θ_2 的圆锥角辐射出来,我们观察到的输出光空间模式中的环状结构正是来源于此,斯托克斯受激拉曼散射光与反斯托克斯受激拉曼散射光的产生也使得激光脉冲的频谱范围进一步加宽.当斯托克斯受激拉曼散射光的波矢与反斯托克斯受激拉曼散射光的波矢进一步满足下列相位匹配关系时将产生更高级的斯托克斯受激拉曼散射光和反斯托克斯受激拉曼散射光:

$$\begin{aligned} 2k_{S2} &= k_{S1} + k_{S3}, \\ 2k_{AS1} &= k_{AS2} + k_p, \\ k_p + k_{S1} &= k_{AS2} + k_{S3}, \\ 2k_{AS2} &= k_{AS3} + k_{AS1}, \end{aligned} \quad (5)$$

式中下标 S3 表示三级斯托克斯受激拉曼散射光, AS2 表示二级反斯托克斯受激拉曼散射光, AS3 表示三级反斯托克斯受激拉曼散射光.如果此时钛宝石晶体向共轴点方向移动,激光脉冲频谱进一步展宽,此时起作用的是自相位调制.图 6(a) 所示是此时最宽的激光脉冲频谱,其中心波长为 735 nm,频谱半高全宽为 144 nm,输出功率为 280 mW.这是目前国内直接从自锁模钛宝石激光器中所获得的最宽频谱.从图 6 可以看出,频谱呈现明显的三峰结构.这是因为当激光脉冲在钛宝石晶体中传输时,自相位调制作用一方面使激光脉冲频谱展宽,另一方面使激光脉冲在不同的时刻出现相同的频率啁啾,这等效于不同相位的光波具有相同的瞬时频率,因此可发生相长或相消的干涉,在特定的时刻就可能表现为激光脉冲频谱的多峰结构.慢慢地移动放置在 M_4 前端的光阑,可实现钛宝石激光器锁模状态下 670—865 nm 范围的波长调谐,如图 6(b) 所示.

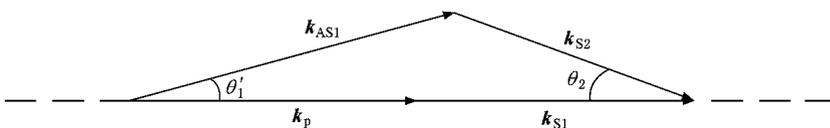


图 5 产生一级反斯托克斯受激拉曼散射光和二级斯托克斯受激拉曼散射光的相位匹配条件示意图

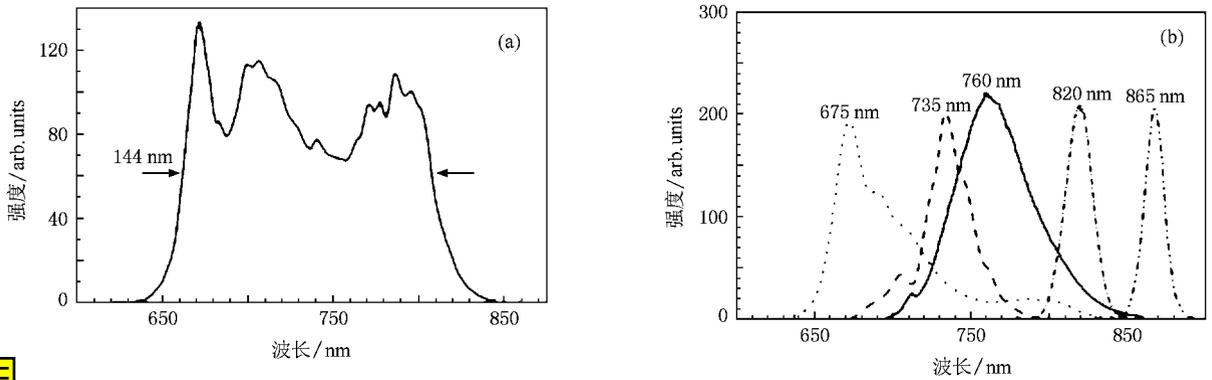


图 6 钛宝石激光器输出激光脉冲的功率频谱 (a) 半高全宽为 144 nm 的功率频谱 (b) 波长在 670—865 nm 范围内调谐的功率频谱

4. 结 论

自锁模钛宝石飞秒激光器工作在下稳区的上边界, 由于受激拉曼散射和四波混频效应的共同作用, 使得锁模激光脉冲的频谱在自相位调制展宽频谱的

基础上进一步增宽, 最宽可达 144 nm, 同时其光斑空间模式也由基横模变化至衍射环状结构, 在此锁模状态下钛宝石激光器可实现 670—865 nm 波长调谐. 在激光器谐振腔的腔内和腔外同时采用熔融石英棱镜对精确补偿群速度色散, 容易获得亚 10 fs 激光脉冲.

- [1] Salin F , Squier J 1992 *Opt. Lett.* **17** 1352
- [2] Haus H A , Fujimoto J G , Ippen E P 1992 *IEEE J. Quantum Electron.* **28** 2086
- [3] Christov I P , Stoev V D 1998 *J. Opt. Soc. Am. B* **15** 1960
- [4] Cerullo G , De Silvestri S , Magni V , Pallaro L 1994 *Opt. Lett.* **19** 807
- [5] Lin W Z , Chen Y C 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 429
- [6] Magni V , Cerullo G , Silvestri S D , Monguzzi A 1995 *J. Opt. Soc. Am. B* **12** 476
- [7] Lin W Z , Chen Y C , Wen J H 1999 *Laser Phys.* **9** 324
- [8] Krausz F , Brabec T , Spielmann C 1991 *Opt. Lett.* **16** 235
- [9] Lamb K , Spence D E , Hong J , Yelland C , Sibbet W 1994 *Opt. Lett.* **19** 1864
- [10] Herrmann J 1994 *J. Opt. Soc. Am. B* **11** 498
- [11] Georgiev D , Herrmann J , Stamm U 1992 *Opt. Commun.* **92** 368
- [12] Zhou J , Taft G , Huang C P , Murnane M M , Kapteyn H C , Christov I 1994 *Opt. Lett.* **19** 1149
- [13] Harvey J D , Dudley J M , Curley P F , Spielmann C , Krausz F 1994 *Opt. Lett.* **19** 972
- [14] He G S , Zhou F X , Liu D , Liu S H 1986 *Chin. J. Lasers* **29** (in Chinese) 赫光生、周福新、刘 盾、刘颂豪 1986 中国激光 **29**]

The stimulated Raman scattering and the four wave mixing in the generation of sub-10 fs pulses^{*}

Deng Li^{1)†} Sun Zhen-Rong¹⁾ Lin Wei-Zhu²⁾ Wen Jin-Hui²⁾

¹⁾ *State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China*

²⁾ *State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China*

(Received 27 December 2007 ; revised manuscript received 28 August 2008)

Abstract

A self-built self-mode-locked Ti:sapphire laser is operated at the upper edge of the stable region. Two double-prism systems are used to compensate for the second-order dispersion in and out of the laser cavity. Broad band laser pulses with bandwidth of 664–840 nm have been generated, and their mode changes from the basic mode to the ring structure. The interesting experimental phenomenon is due to the stimulated Raman scattering and the four wave mixing, which provides the necessary condition to generate the sub-10 fs laser pulses.

Keywords : femtosecond pulses, stimulated Raman scattering, four wave mixing, group velocity dispersion

PACC : 4260F, 4260H, 4265C, 4265M

^{*} Project supported by the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education of China (Grant No. 20050269011).

[†] E-mail : ldeng@phy.ecnu.edu.cn