

载波-包络相位稳定的周期量级 近红外超短脉冲激光系统*

宋立伟 李 闯† 王 丁 许灿华 冷雨欣 李儒新

(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)

(2010 年 8 月 30 日收到; 2010 年 10 月 11 日收到修改稿)

利用光参量放大过程输出的闲置光载波-包络相位(CEP)被动稳定的特点, 搭建了三级光参量放大(OPA)系统, 获得了 CEP 稳定的近红外高能量超短激光脉冲($1.4 \text{ mJ}/40 \text{ fs}/1 \text{ kHz}$ @ $1.8 \text{ }\mu\text{m}$), 其 CEP 抖动为 516 mrad (rms). 经空心光纤展宽光谱和块体材料补偿色散, 激光脉宽最终可被压缩至小于两个光学周期($< 12 \text{ fs}$), 脉冲能量达到 0.54 mJ . 该系统为单个阿秒脉冲的产生和其他高次谐波实验提供了优质的光源.

关键词: 光参量放大, 周期量级近红外激光脉冲, 载波-包络相位稳定

PACS: 42.60.-v, 42.65.Yj, 42.87.-d

1. 引言

超短激光脉冲的产生和发展使人类能够在更短的时间尺度上研究物理化学反应, 它极短的持续时间为观察和控制微观世界中的极端超快过程提供了强有力的工具, 使深入探索分子和原子甚至原子内部的动力学过程成为可能. 例如, 1999 年 Zewail 利用超短激光脉冲抽运-探测技术成功的控制了化学键的成键和断裂, 使人们能够观察到处于化学反应过程中的原子和分子的转变状态, 揭示了整个化学反应过程^[1]. 随着研究的深入, 超短激光脉冲的时域脉宽记录被不断刷新^[2-5]. 2008 年, Krausz 小组利用基于高次谐波产生(HHG)的阿秒脉冲技术获得了脉宽小于 100 as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) 的超短激光脉冲^[6]. 最近, 该小组利用阿秒脉冲成功观测到原子内部价电子的动力学过程^[7].

基于高次谐波产生(HHG)的阿秒脉冲技术是目前获得单个阿秒脉冲最可靠的途径, 它需要周期量级载波-包络相位(CEP)稳定的超短激光脉冲来驱动^[8]. 为了得到脉宽更窄的单个阿秒脉冲并提高光子能量, 高能量载波-包络相位(CEP)稳定的超短脉冲激光光源被广泛的研究. 已有的研究表明,

高次谐波的截止频率与驱动光波长的平方成正比, 波长越长所获得的高次谐波截止区级次越高, 越有利于获得时域上更窄的阿秒脉冲^[9]. 但是, 长波长驱动导致高次谐波的转化效率降低, 产生的阿秒脉冲能量降低. 因此, 综合以上两种效应, 波长 $1.5-3 \text{ }\mu\text{m}$ 的近红外超短脉冲激光被认为是最合适的阿秒脉冲驱动光源^[10]. 另外, 近红外激光脉冲可以与较短波长的激光脉冲(如 $\lambda = 800 \text{ nm}$)相结合组成双色场, 对于提高高次谐波的截止频率和阿秒脉冲的产生效率有重要意义^[11]. 光参量放大(OPA)技术已经被证明可以获得波长 $1.2-2.4 \text{ }\mu\text{m}$ 的近红外高能量超短激光脉冲输出^[12], 达到了阿秒脉冲驱动源的理想波段.

除了具有合适的波长, 单个阿秒脉冲的驱动光源必须是 CEP 稳定的. 目前, CEP 稳定的方法有主动稳定和被动稳定两种. 其中, 主动稳定技术通过反馈环路对激光系统的 CEP 进行锁定, 已经在世界范围内得到了广泛的应用^[13-16]. 但是这种稳定方式技术难度大, 系统复杂, 对环境(例如机械振动、空气扰动等)要求较高. 而被动稳定技术根据差频过程中闲置光的 CEP 在理想状态下为常量的原理, 通过引入差频过程使激光脉冲的 CEP 得到稳定^[17]. OPA 过程也是一种差频过程, 所以它输出的闲置光

* 国家自然科学基金(批准号:10734080, 60921004), 国家重点基础研究发展计划(批准号:2011CB808100)和上海市科学技术委员会项目资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: chuanguang_li@siom.ac.cn

CEP 是被动稳定的. 这样, OPA 系统可以输出 CEP 稳定的, 波长在 $1.2\text{--}2.4\ \mu\text{m}$ 之间的近红外超短激光脉冲. 经过脉冲压缩, 最终可以得到较高能量周期量级的阿秒脉冲驱动光源.

在本文介绍的系统中, 我们采用三级 OPA 技术, 获得了波长 $1.8\ \mu\text{m}$, 能量 $1.4\ \text{mJ}$, 脉宽 $40\ \text{fs}$, CEP 稳定的超短激光脉冲. 经过空心光纤展宽光谱和石英楔板补偿色散, 脉宽被压缩到两个周期之内 ($<12\ \text{fs}$), 输出能量为 $0.54\ \text{mJ}$, 是当今国际上的最高水平, 为阿秒脉冲的产生和其它高次谐波实验提供了优质的光源.

2. CEP 稳定的三级 OPA 系统

三级 OPA 系统的光路结构如图 1 所示, 系统驱

动光源为商品化钛宝石激光器 (Coherent LEGEND - HE - Cryo), 工作波长为 $800\ \text{nm}$, 重复频率为 $1\ \text{kHz}$, 输出脉宽 $40\ \text{fs}$, $8\ \text{mJ}$ 入射光经 BS_1 分束, 约 80% 的能量反射, 作为第三级 OPA 的抽运光 (Pump_3); 透射部分经 BS_2 分束, 其中约 80% 又被反射作为第二级 OPA 的抽运 (Pump_2); 透射部分经 L_1 聚焦, 然后再经过 BS_3 分束, 其中约 80% 被反射, 作为第一级 OPA 的抽运 (Pump_1). BS_3 的透射部分经半波片偏振旋转 90° , 经 L_1 聚焦到 $2\ \text{mm}$ 厚的蓝宝石片上, 调节中性可调衰减片 (VND) 可以获得稳定的单丝 (白光超连续谱). 该白光超连续谱中包含了宽带光谱成分, 为接下来的三级 OPA 提供了种子.

白光超连续谱经 L_2 聚焦到 BBO_1 ($2.5\ \text{mm}$ 厚, II 类匹配, $\theta = 27.3^\circ$, $\phi = 30^\circ$). 通过 L_3 调节 Pump_1

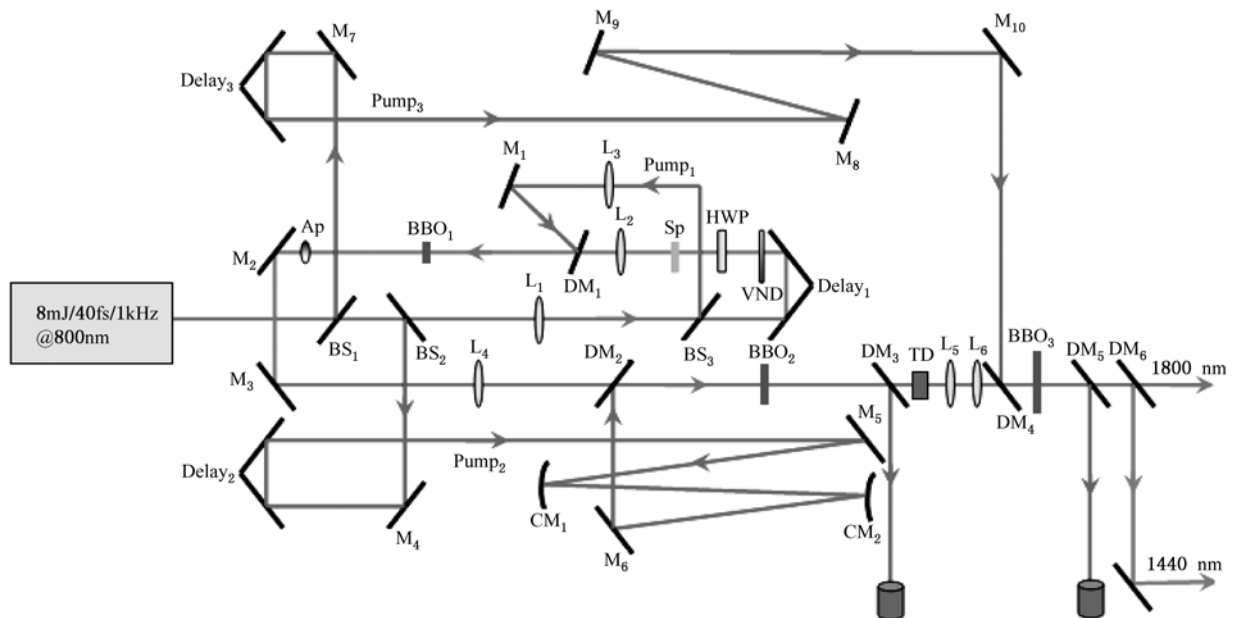


图1 OPA 系统光路图 $\text{BS}_1\text{--}\text{BS}_3$: 分束片; $L_1\text{--}L_6$: 透镜; $\text{Delay}_1\text{--}\text{Delay}_3$: 延时器; VND: 中性变密度衰减片; HWP: 半波片; Sp: 蓝宝石晶体; $\text{DM}_1\text{--}\text{DM}_6$: 双色镜; $M_1\text{--}M_{10}$: 平面镜; $\text{BBO}_1\text{--}\text{BBO}_3$: β -barium borate 晶体; Ap: 光阑; $\text{CM}_{1,2}$: 球面镜; TD: 双折射晶体; $\text{Pump}_1\text{--}\text{Pump}_3$: 抽运光

的光斑大小, 使之与白光匹配. OPA_1 采用非共线结构, 白光与 Pump_1 的夹角约为 4° , 便于利用光阑 (Ap) 将信号光从抽运光、合频光等成分中分离出来. 图 2 是 OPA_1 过程产生的各个光斑的示意图. 转动 BBO_1 , 不同波段的白光被放大, 此时信号光和合频光的颜色会发生变化.

经 OPA_1 后, 信号光能量放大至约 $3\text{--}5\ \mu\text{J}$, 然后经 L_4 准直入射到 BBO_2 ($2\ \text{mm}$ 厚, II 类匹配, $\theta =$

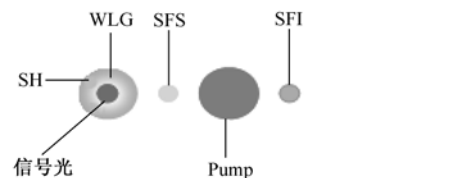


图2 OPA_1 输出光斑 WL: 透过的白光超连续谱; SH: 信号光的倍频; SFS: 信号光与抽运光的合频; Pump: 剩余抽运光; SFI: 闲频光和抽运光的合频

27.3° , $\phi = 30^\circ$). Pump₂经 CM₁, CM₂ 缩束, 与信号光共线入射到 BBO₂. OPA₂ 采用共线结构, 且信号光和抽运光都是平行入射到 BBO₂ 上, 输出信号光和闲置光各 60 μJ . 由差频信号 CEP 被动稳定的原理, 现在有两种途径获得 CEP 稳定的脉冲: 一是以 OPA₂ 的闲置光作为 OPA₃ 的信号光, 那么 OPA₃ 输出的信号光 CEP 稳定; 二是以 OPA₂ 的信号光作为 OPA₃ 的信号光, 那么 OPA₃ 输出的闲置光 CEP 稳定. 实验中我们采取了第二种方案, 因为该方案输出光的聚焦能力更强.

OPA₃ 过程采用与 OPA₂ 类似的共线结构. OPA₂ 的出射光先经 DM₃ 将剩余的抽运光反射掉, 再经过双折射晶体 (YVO₄, 厚 1.5 mm), 使信号光 ($\lambda = 1440 \text{ nm}$) 与闲置光 ($\lambda = 1800 \text{ nm}$) 产生约 1 ps 的延时, 最后与 Pump₃ 共线平行入射到 BBO₃ (厚 2 mm, II 类匹配, $\theta = 27.3^\circ$, $\phi = 30^\circ$). 调节延时 (Delay₃), OPA₂ 的信号光得到放大, 由双色镜 DM₅ 反射掉剩余的抽运光, 由 DM₆ 反射输出 OPA₃ 的信号光, 透射输出 OPA₃ 的闲置光. 其中, OPA₃ 的闲置光是 CEP 稳定的高能量近红外超短激光脉冲 (1.4 mJ/40 fs/1 kHz @ 1.8 μm). 同时, OPA₃ 输出的信号光, 即由 DM₆ 反射的部分, 虽然 CEP 不稳定, 但也具有很好的光束质量, 是优质的近红外超短脉冲光源 (1.5 mJ/40 fs/1 kHz @ 1440 nm). 此外, 可以通过调节 BBO₁—BBO₃ 的角度和延时, 使整个 OPA 系统的输出波长在 1.2—2.4 μm 之间调谐.

3. 近红外超短激光脉冲脉宽的压缩

前面所述的 OPA 系统已经获得了 CEP 稳定的近红外超短激光脉冲. 但是, 要作为阿秒脉冲的驱动光源, 必须对脉宽进一步压缩.

我们采用了空心光纤展宽光谱-石英楔板补偿色散的方法, 将波长 1.8 μm 的近红外激光脉冲的脉宽压缩到两个光周期以内 ($< 12 \text{ fs}$). 图 3 为脉冲压缩实验光路示意图, OPA 系统的输出脉冲耦合入 1 m 长空心光纤 (内径 400 μm , 氩气气压 1000 mbar, 1 bar = 10^5 Pa), 通过自相位调制, 光谱覆盖到 1.4—2.2 μm (图 4).

空心光纤出射的超连续谱经凹面镜准直, 入射到两片石英楔板组成的色散补偿器, 通过调节楔板的插入厚度, 使色散得到补偿. 实验中, 最佳的插入厚度约 1 mm.

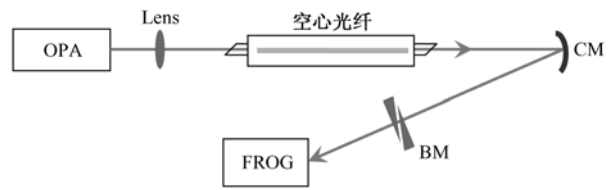


图 3 脉冲压缩实验光路示意图 Lens: $f = 500 \text{ mm}$ 凸透镜; CM: $f = 750 \text{ mm}$ 凹面镜; BM: 由一对石英楔板组成的可调色散补偿片

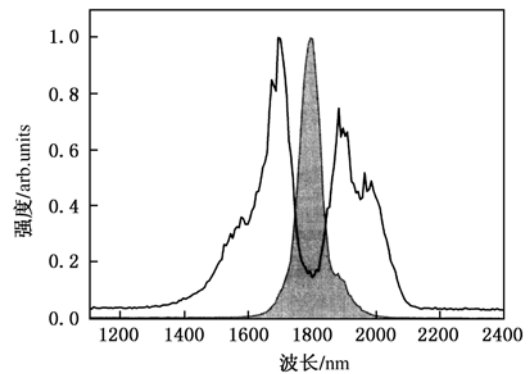


图 4 OPA 输出脉冲的光谱 (阴影部分) 和空心光纤展宽后的光谱 (实线)

周期量级飞秒激光脉冲的脉宽和光谱可以用频率分辨光学开关 (FROG) 来测量^[18,19]. 我们通过自主搭建的 SHG-FROG, 对压缩后的脉宽进行了测量. 测量结果如图 5, 计算得到的脉宽为 $\sim 10 \text{ fs}$.

4. CEP 稳定性的测量

如前所述, CEP 的稳定性对于周期量级的超短脉冲实验具有重要的意义. 在理想情况下, OPA₃ 过程所产生的闲置光是 CEP 稳定的. 但是具体实验中, 激光能量的不稳定、相位匹配的变化以及其他环境因素都会引起 CEP 的抖动^[20, 21]. 我们对 OPA 系统输出的长脉冲和经空心光纤压缩后的周期量级脉冲分别进行 CEP 稳定性的测量.

目前, f-2f 自参考技术是测量 CEP 稳定性最常用的方法^[22, 23]. 其原理是: 超短激光脉冲通过自相位调制展宽光谱, 光谱中的低频成分经过倍频再与光谱中的高频成分发生干涉, 干涉信号可以表示为^[17]

$$S(\omega) = (1 - a)I_{\text{WL}}(\omega) + aI_{\text{SHG}}(\omega)$$

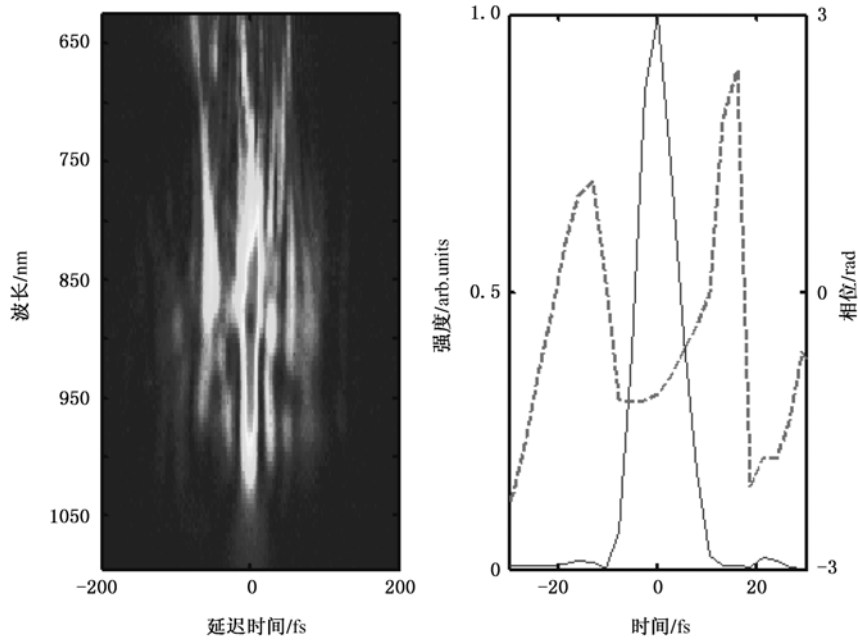


图5 Frog 测量结果 (a) 实验测得的 Frog 图像; (b) 时域脉冲(实线)和光谱(虚线)

$$+ 2 \sqrt{a(1-a)I_{\text{WL}}(\omega)I_{\text{SHG}}(\omega)}$$

$$\times \cos(\phi_{\text{SHG}}(\omega) - \phi_{\text{WL}}(\omega) + \omega\tau_0 + \varphi),$$

其中, a 为倍频光通过偏振片的透过率, $I_{\text{WL}}(\omega)$ 为基频光强, $I_{\text{SHG}}(\omega)$ 为倍频光强, $\phi_{\text{SHG}}(\omega)$ 为倍频引入的附加相位, $\phi_{\text{WL}}(\omega)$ 为自相位调制引入的附加相位, ω 为激光频率, τ_0 为基频成分和倍频成分的光程差, φ 为载波-包络相位. 利用光谱干涉的傅里叶变换算法^[24], 可以计算出 φ 的变化量, 从而得到 CEP 的稳定性.

图 6 为 CEP 测量光路示意图. OPA 系统的输出脉冲(或经压缩后的周期量级脉冲)经分束片分反射出约 40 μJ , 聚焦到 2 mm 厚的蓝宝石(Sp)上, 通过自相位调制产生白光超连续谱(WLC). 经准直

后, WLC 被带通分束片(BS_1)分成两部分: 透射部分(Path₁)包含 $\lambda > 860 \text{ nm}$ 的光谱成分, 通过时间延迟线(time-delay unit), 又经 BBO(厚 0.1 mm, I 类匹配)倍频后入射到分束片(BS_2)上; 反射部分(Path₂)波长在 800—860 nm, 经全反镜反射, 与 Path₁ 部分通过分束片(BS_2)合束. 调节两部分之间的延时和相对光强, 转动偏振棱镜(polarizing prism)选择偏振相同的部分, 直到光谱仪获得清晰的干涉条纹, 此干涉条纹包含了入射光 CEP 的信息. 设置光谱仪在 6 s 内采集 1000 幅干涉图, 并利用傅里叶变换的方法进行数据处理, 最终测得 CEP 的稳定性.

图 7 是压缩前后, 6 s 内 1000 发激光脉冲的 f-2f

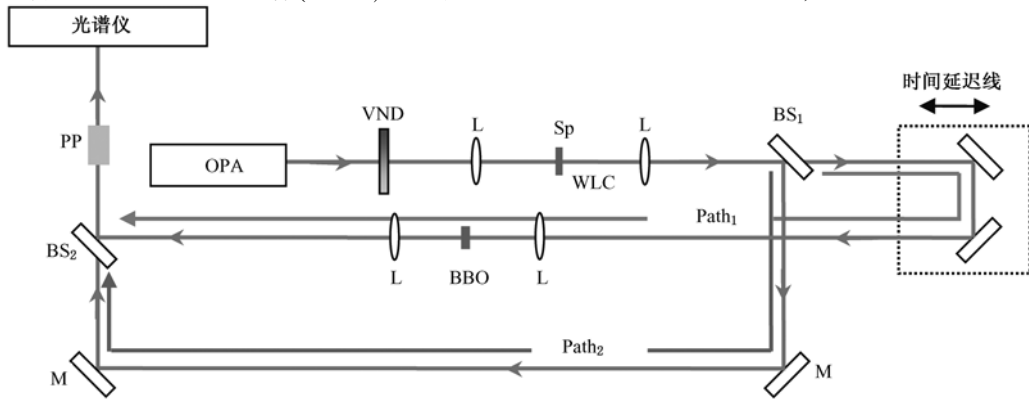


图6 CEP 测量装置 VND: 中性变密度衰减片; L: 透镜; Sp: 蓝宝石; WLC: 白光超连续谱; BS_1 : $\lambda = 800\text{—}860 \text{ nm}$ 高反, $\lambda = 1100\text{—}2200 \text{ nm}$ 高透; BS_2 : $\lambda = 800\text{—}860 \text{ nm}$ 50% 透射, 50% 反射; M 全反镜; PP: 偏振棱镜

干涉图和 CEP 变化情况. 从图中可以看出, 在测量时间内, OPA 系统输出的超短激光脉冲维持着比较稳定的载波 - 包络相位, 且压缩前后 CEP 稳定性变

化不大. 其中, OPA 的输出光 (40 fs @ 1800 nm) CEP 均方差值为 516 mrad; 经光纤压缩后的周期量级超短脉冲 CEP 均方差值为 532 mrad.

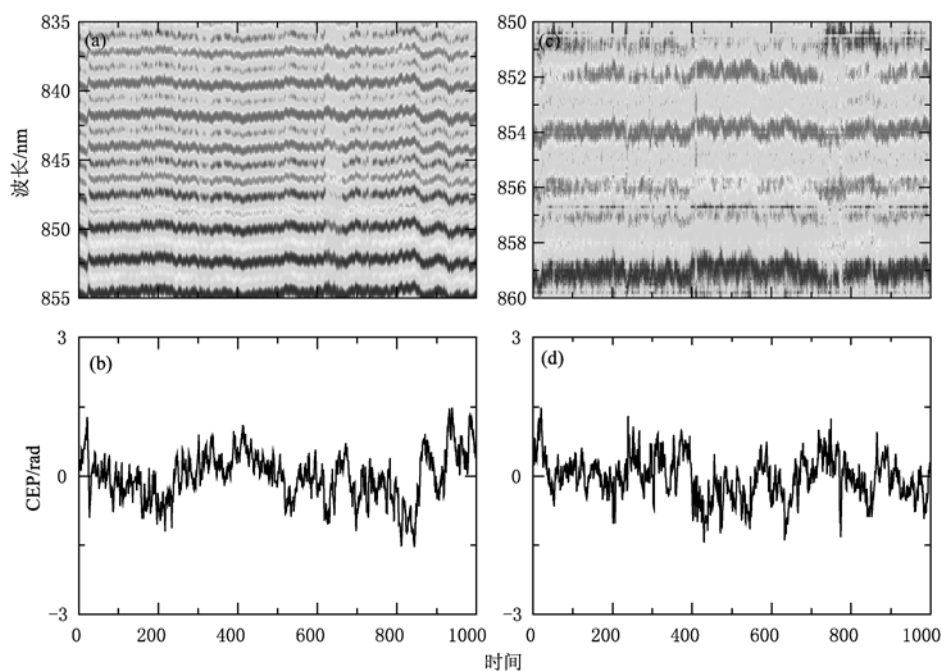


图7 OPA 输出脉冲和压缩后的周期量级激光脉冲 CEP 随时间的变化 (a), (b) 为 OPA 输出脉冲的 $f-2f$ 干涉图和 CEP 值随时间的变化; (c), (d) 为压缩后的周期量级激光脉冲的 $f-2f$ 干涉图和 CEP 随时间的变化

5. 结 论

文中描述了载波 - 包络相位稳定的三级光参量放大系统, 以商品化钛宝石激光器作为光源, 得到 1.4 mJ/40 fs/1 kHz @ 1.8 μm 的近红外激光脉冲

输出, CEP 稳定性约 516 mrad. 经空心光纤展宽光谱和块体材料补偿色散, 脉宽被压缩至两个光周期以内 (< 12 fs), 输出能量为 0.54 mJ, CEP 稳定. 这套 OPA 系统的搭建为单个阿秒的产生和其他高次谐波实验提供了良好的光源.

- [1] Zewail A H 1988 *Science* **242** 1645
- [2] Backus S, Durfee C G III, Murnane M M, Kapteyn H C 1998 *Rev. Sci. Instrum.* **69** 1207
- [3] Pierre Agostini, Louis F DiMauro 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 813
- [4] József Seres, Alexander Müller, Enikő Seres, Kevin O'Keeffe, Miklós Lenner, Richard F. Herzog, Daniel Kaplan, Christian Spielmann and Ferenc Krausz 2003 *Opt. Lett.* **28** 1832
- [5] Xiaowei Chen, Xiaofang Li, Jun Liu, Pengfei Wei, Xiaochun Ge, Ruxin Li, Zhizhan Xu 2007 *Opt. Lett.* **32** 2402
- [6] Yong Soo Lee, Jae Hee Sung, Chang Hee Nam, Tae Jun Yu, Kyung-han Hong 2005 *Opt. Express* **13** 2969
- [7] Zhang Wei, Han Hai-Nian, Teng Hao, Wei Zhi-Yi 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1105
- [8] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, Reider G A, Milosevic N, Brabec T, Corkum P, Heinzmann U, Drescher M, Krausz F 2001 *Nature* **414** 509
- [9] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [10] Vladislav S. Yakovlev, Misha Ivanov, Ferenc Krausz 2007 *Opt. Express* **15** 15351
- [11] Zhinan Zeng, Ya Cheng, Xiaohong Song, Ruxin Li, Zhizhan Xu 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 203901
- [12] Chunmei Zhang, Pengfei Wei, Yansui Huang, Yuxin Leng, Yinghui Zheng, Zhinan Zeng, Ruxin Li, Zhizhan Xu 2009 *Opt. Lett.* **34** 2730
- [13] Chengquan Li, Eric Moon, Hiroki Mashiko, Christopher M. Nakamura, Predrag Ranitovic, Chakra M. Maharjan, C. Lewis Cocke, Zenghu Chang 2006 *Opt. Express* **14** 11468

- [14] Masayuki Kakehata, Hideyuki Takada, Yohei Kobayashi *et al* 2004 *Opt. Express* **12** 2070
- [15] Tae Jun Yu, Kyung-Han Hong, Hyung-Gyu Choi, Jae Hee Sung, Il Woo Choi, Do-Kyeong Ko, Jongmin Lee, Junwon Kim, Dong Eon Kim, Chang Hee Nam 2007 *Opt. Express* **15** 8203
- [16] 杜强、朱江峰、滕浩、运晨霞、魏志义 2008 科学通报 **53** 40
- [17] Baltuška A, Uiberacker M, Goulielmakis E, Kienberger R, Yakovlev V S, Udem T, Hänsch T W, Krausz F 2003 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron* **9** 972
- [18] Baltuska A, Pshenichnikov M S, Wiersma D 1998 *Opt. Lett.* **23** 1474
- [19] Selcuk Akturk, Ciro D'Amico, Andre Mysyrowicz 2008 *J. Opt. Soc. Am. B* **25** A65
- [20] Chengquan Li, Eric Moon, He Wang, Hiroki Mashiko, Christopher M. Nakamura, Jason Tackett, and Zenghu Chang 2007 *Opt. Lett.* **32** 796
- [21] Renault A, Kandula D Z, Witte S, Wolf A L, Zinkstok R T, Hogervorst W, Eikema K S E 2007 *Opt. Lett.* **32** 2363
- [22] Masayuki Kakehata, Hideyuki Takada, Yohei Kobayashi, Kenji Torizuka, Yoshihiko Fujihira, Tetsuya Homma, and Hideo Takahashi 2001 *Opt. Lett.* **26** 1436
- [23] Wang J L, Zhang C M, Song L W, Leng Y X 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3966 (in Chinese) [王建良、张春梅、宋立伟、冷雨欣 2009 物理学报 **58** 3966]
- [24] Takeda M, Ina H, Kobayashi S 1982 *J. Opt. Soc. Am.* **72** 156

Carrier-envelope stabilized few-cycle infrared laser system^{*}

Song Li-Wei Li Chuang[†] Wang Ding Xu Can-Hua Leng Yu-Xin Li Ru-Xin

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(Received 30 August 2010; revised manuscript received 11 October 2010)

Abstract

According to the feature of the passive carrier-envelope phase (CEP) stabilized idler of the optical parametric amplified process, a CEP stabilized three-stage collinear optical parametric amplifier is built. Millijoule ultrashort infrared output (1.4 mJ/40 fs/1 kHz at 1.8 μm) with CEP fluctuation $\sim 516\text{mrad}$ is obtained from the system. After passing through a hollow-core fiber and block material, the pulses are finally compressed to less than two cycles ($< 12\text{ fs}$), and the single pulse energy is 0.54 mJ. The system provides an excellent laser source for the experiments of individual attosecond pulse generation and other high harmonic generation (HHG).

Keywords: optical parametric amplify, few-cycle near infrared laser pulses, carrier-envelope phase stabilization

PACS: 42.60.-v, 42.65.Yj, 42.87.-d

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10734080, 60921004), the Major State Basic Research Development Program of China (Grant No. 2011CB808100) and the Shanghai Municipal Science & Technology Commission.

[†] Corresponding author. E-mail: chuang_li@siom.ac.cn