

飞秒光脉冲的产生、放大和压缩

孟绍贤

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

摘要

评述了飞秒光脉冲研究的现状，其包括同步泵浦连续染料激光器、对碰锁模环形染料激光器、飞秒光脉冲的多级放大和超短光脉冲的压缩。

近年来，激光物理最杰出的成就之一，无疑是飞秒($\sim 10^{-15}$ s)光脉冲的产生、放大和压缩。用这样的短脉冲可以研究化学、生物学、等离子体物理和固体物理中的大量问题。

有机染料是产生飞秒光脉冲的理想介质，因为它的发射光谱很宽，在半强度点的宽度可达50nm，因此可获得极短的脉冲，并在很大的光谱范围内可调，最大波长可调范围达100nm。另外，有机染料的受激发射截面很大(约 10^{-16} cm²)，因此很薄的介质就可获得足够的增益。再者，有机染料斯托克斯频移很大，因此可用单一波长激光泵浦不同染料，在相当宽的波长范围内获得激光输出。

现在通用的飞秒光脉冲源都是采用连续激光泵浦的，从而产生连续的超短脉冲列。产生飞秒光脉冲有两种基本方法。一种是用主动的或同步泵浦染料激光器，它的优点是容易进行波长调谐，目前用这种方法得到的最短脉冲是65fs^[1]。另一种是用被动锁模染料激光器，目前最通用的是对碰锁模染料激光器，它的优点是容易获得最短的光脉冲。贝尔实验室的记录是27fs^[2]。

由同步泵浦染料激光器输出的超短脉冲列，其平均功率可达150mW，通过倍频可变为紫外光。而由对碰锁模染料激光器输出的超短脉冲列，其平均功率只有20mW，很难直接应用。为了提高输出功率就需要进行多级放大，然而由于放大过程中工作物质的色散，从而使激光脉冲变宽。为了获得短脉冲，则需要进一步用光纤光栅系统进行脉冲压缩。

一、同步泵浦染料激光器

同步泵浦染料激光器是最通用的激光系统。它能够提供从可见到近红外可调谐的连续的超短光脉冲，它是用一个主动锁模离子激光器(氩离子或氪离子激光器)泵浦腔长匹配的连续染料激光器。近年来开始采用连续锁模Nd:YAG激光器作为泵浦源^[3]。大约100ps宽的泵浦脉冲可以转换为几个皮秒或更短的染料激光脉冲。

典型的同步泵浦染料激光器实验装置见图1。用一个主动锁模氩离子激光器泵浦一个连续的染料激光器，染料激光器的腔长能很好匹配于泵浦激光器，所以形成了主动的同步泵浦。

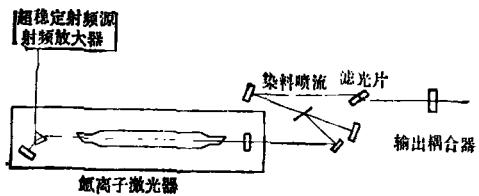


图1 同步泵浦染料激光器

泵浦激光器的锁模用一个接近后腔镜放置的声光调制器达到，以免产生双脉冲。大约1W的射频功率通过一个换能器加到顶角为68°30'的石英棱镜上。采用的射频源的频率是使在激光腔往返频率时，通过棱镜的光能够产生衍射。这个周期性损耗导致纵模式间的位相锁定。结果形成一个周期 $\sim 2L/c$ 的脉冲序列， L 为腔长。此时射频调制频率与腔长关系为

$$\omega_m = \frac{c}{4L} \quad (1)$$

一般商业上采用的调制器频率是 38MHz 和 41MHz。由于射频源的频率确定脉冲间隔，因此频率稳定对得到好的锁模是十分重要的。所有氩和氪离子的主线都可产生锁模。用一个稳定的射频源可得到的典型锁模脉冲宽度为 80—150ps。锁模氩离子激光器已得到的最短脉冲宽度为 61ps^[4]。锁模氪离子激光器已得到的最短脉冲宽度为 50ps^[5]。锁模离子激光器对较强的线输出的平均功率可高到 1.5W。连续锁模 Nd:YAG 激光器得到典型锁模脉冲宽度是 70—80ps，平均功率为 9W。用上述锁模激光器同步泵浦一个标准连续染料激光器，当染料激光器腔长调整正确时，产生的脉冲宽度可短于泵浦激光脉冲宽度的 100 倍。定性说来，染料激光器的脉冲压短是由染料脉冲前沿增益逐渐增大，而在染料脉冲的峰值处随着而来的粒子数快速倒空所引起的。这两个因素引起脉冲中心比两翼有较大的放大，所以脉冲在腔内持续往返中变短。这个脉冲压缩机构的作用直到腔内色散（例如腔内双折射滤光片）变显著，压短和加宽机构间达到平衡时为止。

同步泵浦锁模染料激光器的重要改进是附加一个腔倒空器。它由两个高反射率腔镜构成，中间包括一个声光介质。当射频功率加在声光介质（布拉格盒）上时，才输出脉冲。通常布拉格盒的驱动频率等于腔的往返频率的分数。经过腔倒空器输出脉冲重复频率为 3.8MHz 或 4.1MHz。采用腔倒空器可使输出脉冲列中每个脉冲的能量增加 30—40nJ（没有腔倒空器时，每个脉冲的能量为 1nJ）。通常包括腔倒空器的染料激光器给出脉冲宽度大于 10ps。然而在染料激光器腔内加入一个稀释的可饱和吸收体（DODCI 乙二醇溶液）作为第二个喷流时，腔倒空输出的脉冲宽度可达 2ps，每个脉冲能量为 20nJ。我们实验室采用的双喷流激光器装置见图 2。

通常包括若丹明 6G 和 DODCI 双喷流同步泵浦染料激光器输出的波长覆盖范围为 570nm—650nm。若改用其它增益介质（如香豆素、红外 140），则同步泵浦染料激光器可在

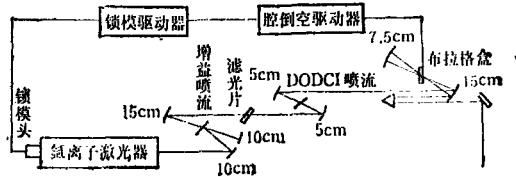


图 2 包括腔倒空器的同步泵浦染料激光器

可见到红外波段输出激光。

若在同步泵浦染料激光器腔中加入四个布儒斯特角棱镜组，去掉腔倒空器和双折射滤光片，则棱镜组可以补偿激光器所有其它部分引起的群速度色散。在泵浦激光器为 532nm，重复率 76MHz，脉冲宽度 80ps，平均功率 1.4W 时，人们在 610nm 波长，可得重复率 76MHz，脉冲宽度 65fs，平均功率为 100mW 的超短脉冲列^[1]，但波长可调谐性能降低。

二、对碰锁模染料激光器

把被动锁模技术用于连续激光器时，增益介质用一连续激光器泵浦，在激光器腔内同时放置另一个作为可饱和吸收体的染料。可饱和吸收体与增益介质一起作用，结果产生超短脉冲连续系列。

通常可饱和吸收体采用 DODCI 乙二醇溶液，DODCI 染料基态恢复时间为 1.2ns，它大于染料激光脉冲宽度。因而它的作用仅使脉冲的前沿变陡。而增益饱和与线性损耗组合对脉冲的后沿进行甄别。获得超短脉冲的必要条件是吸收体饱和比增益介质饱和更容易。这保证了在脉冲峰值获得净增益，而在脉冲两翼承受损耗。再者，它与同步泵浦染料激光器一样，脉冲多次通过激光器，使脉冲变短。增益和损耗（可饱和吸收体）两种染料的恢复时间在脉冲通过后的几个毫微秒内，压短脉冲过程持续到色散效应阻止脉冲进一步变窄和平衡态建立时为止。1981 年，Fork 等^[6]发明了对碰脉冲锁模环形激光器，使被动锁模染料激光器的研究迈出了新的一步。对碰锁模环形染料激光器的装置如图 3 所示。

它消除了驻波腔设计上的许多困难。它可

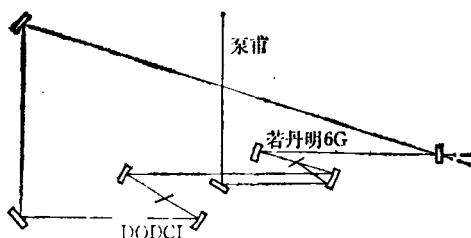


图3 对碰锁模环形染料激光器

以产生小于0.1ps的稳定脉冲。在这个激光器中，激光腔内同时存在两个反向行进的循环脉冲。当两个脉冲同时达到可饱和吸收体时，为获得高增益情况，两个脉冲彼此之间以及两个脉冲与可饱和吸收体之间的相互作用（对碰脉冲锁模）产生了超短光脉冲。反向传播脉冲之间的相互作用使可饱和吸收体的分子数产生一瞬态光栅。两个脉冲可以非常有效地同步、稳定和压缩。较薄的可饱和吸收体染料喷流，引起两个反向行进的脉冲间尖锐重叠，结果输出脉冲变得非常短。用精心做成的标准染料激光器喷嘴（典型喷嘴厚度是600μm），可产生10μm厚的稳定的染料喷流。用这样一个喷嘴可得到两个反向传播光束，其中每一个超短光脉冲宽度为65fs，平均功率为50mW。相应每个脉冲能量为0.5nJ，而峰值功率为5.5kW。

在对碰锁模环形染料激光器中，当脉冲逐渐变短时，由测不准原理确定的脉冲光谱变宽；再者，由于脉冲变短，脉冲功率增加，产生了非线性自位相控制，使脉冲光谱加宽。由于脉冲群速度色散效应，又使脉冲变宽，这就限制了可能获得的最短脉冲宽度。为了获得最佳脉冲宽度，对腔镜选择要进行多次实验，最好选择单一镀层的膜。腔外转向光束镜最好选用铝镜，以便尽可能减少在反射时引起的脉冲畸变。

近来，在对碰锁模激光器中引入四棱镜补偿系统^[7]。这个棱镜系统，不仅可以补偿由腔镜膜、染料、染料溶液引起的群速度色散造成的脉冲加宽，同样也可以补偿由染料溶液在强光下产生的非线性自位相调制所造成的脉冲加宽。这是由于引入棱镜系统，使我们可连续调节腔内色散可正可负，并可为零色散。

在我们的实验中，使用平均功率为4.5W，输出波长为514.5nm的氩离子激光器作泵浦源。染料激光器输出腔镜透过率为3—1.5%，可饱和吸收体喷流厚度为30μm。调整棱镜获得脉冲宽度为50—400fs，输出平均功率为20—30mW，脉冲重复率为100MHz。实验装置如图4所示。

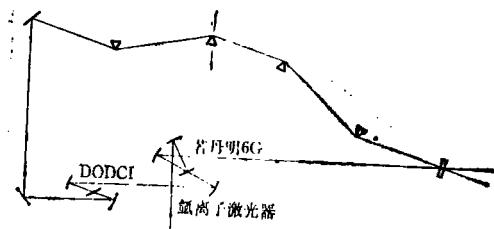


图4 带有四棱镜系统的对碰锁模环形染料激光器

利用这种装置，贝尔实验室得到的最短脉冲宽度为27fs^[2]。

三、飞秒光脉冲的放大

由群速度色散引起的时间加宽与非线性效应引起的频率加宽，在脉冲宽度变短时显著增加。这些不仅影响放大器设计，而且也影响到涉及飞秒脉冲应用上的一系列问题。由角频率差 $\Delta\omega$ 间隔开的光场两个成分之间的群速度色散引起的时间延迟 τ_d 为

$$\tau_d = l \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \Delta\omega, \quad (2)$$

这里 l 是介质长度， k 是光波向量， ω 是角频率。设 τ 是脉冲宽度，取 τ_d/τ 来衡量群速度色散引起的脉冲畸变。那么对变换限制的脉冲($\Delta\omega$ 反比于 τ)，其时间加宽随脉冲宽度减少成平方增加。

随脉冲宽度减小，时间畸变会急剧增加，这在实验上已经看到了。例如75fs的光脉冲通过色散程长为25cm的水，结果脉冲加宽到~410fs。

由群速度色散引起的时间加宽过程，近似为线性频率扫描，它与光栅对引起的色散延迟相反。然而，在染料液中同样产生非线性加宽。它与群速度色散相结合给出不可逆的时间加

宽。放大器饱和的能量密度为 $h\nu/\sigma$, 这里 h 是普朗克常数, ν 为光频率, σ 为增益介质染料的受激发射截面。对若丹明类染料, $h\nu/\sigma \sim 2\text{mJ/cm}^2$ 。此时功率密度 $\sim 10^{10}\text{W/cm}^2$ 。这个值刚好是自位相调制阈值, 因此非线性频率加宽是不可避免的。这个问题同样可在可饱和吸收体溶液中产生。

在放大过程中, 由于光强增加, 自位相调制引起的非线性频率加宽随放大过程中脉冲变窄增加很快,

$$\frac{\delta\omega}{\omega} = -\frac{n_2 l}{c} \frac{\delta\langle E^2 \rangle}{\delta t}, \quad (3)$$

这里 n_2 是放大介质的非线性折射系数, $\langle E^2 \rangle$ 是瞬时电场平方的时间平均值。对恒定能量密度, 由于 $\delta\langle E^2 \rangle/\delta t$ 随脉冲宽度减小成平方增加, 那么 $\delta\omega/\omega$ 与 t^{-1} 之间有平方关系。对这个问题的一个可能的解决办法是采用短程放大器。短程放大器与短的泵浦脉冲相结合还有利于抑制放大的自发辐射。

在任何放大方案中都必须把峰值功率(脉冲能量)和重复率进行统一考虑。在已实现的放大方案中, 脉冲重复率从最低的 10Hz, 经过中等重复率直到 4.1MHz。在低重复率系统中, 飞秒脉冲增益达到 10^6 , 功率达千兆瓦; 在高重复率系统中, 峰值功率为 10—100kW 左右。

在低重复率系统中, 通常采用调 Q Nd:YAG 激光器作为染料放大器的泵浦源。在我们实验中, 采用美国光谱物理公司生产的 DCR-2A 脉冲 Nd:YAG 激光器的倍频作泵浦源, 在波长 532nm 时, 输出脉冲宽度为 6—7ns, 能量为 360mJ。奇通红乙二醇溶液作第一级放大器, 硫代若丹明 640 的乙二醇溶液作最后三级放大器。在每级放大器之间加入孔雀石绿乙二醇溶液作隔离器, 以降低放大的自发辐射影响。实验装置如图 5 所示。这样的系统用于放大对碰锁模环形染料激光器的输出脉冲。

然而在高增益系统中, 染料分子有效贮能时间由于荧光、分子定向时间和放大的自发辐射影响不超过几百个微微秒。为了使泵浦激光

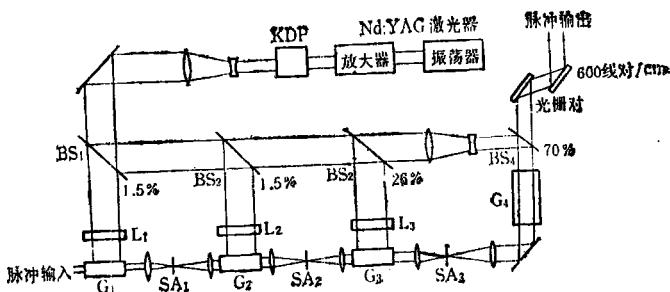


图 5 Nd:YAG 泵浦的飞秒光放大器

器到染料激光器间有最大的能量转移, 因而建立反转粒子数的时间应显著短于有效贮能时间。这要求泵浦脉冲和放大脉冲在泵浦脉冲宽度时间内同步。

同步放大有许多优点, 在放大的脉冲前有相对少量的放大的自发辐射, 从而降低了放大级之间的隔离要求。这个特点对要求高信噪比的脉冲的应用是重要的。其次, 这种同步放大系统从泵浦源到激光能量的转换效率可达百分之几。第三是泵浦脉冲与染料放大脉冲之间的时间波动, 是染料激光输出的幅度波动的来源, 用同步放大方式可大大减少染料激光输出的幅度波动。第四是利用泵浦脉冲或它的谐波同染料放大器输出混频, 可在宽的频率范围获得短的光脉冲。最后, 高能短泵浦脉冲可用于驱动皮秒光开关, 可以无颤动地控制电光或光电子开关。

Mourou 等^[8]就是利用这种方法来放大 70fs 的光脉冲的。然而使泵浦脉冲与飞秒光脉冲之间同步是一个很大的问题。它们实测的同步颤动为 35ps。

中等重复率放大器还没有象低重复率系统那样获得广泛发展。锁模 Q 开关连续 Nd:YAG 激光器^[9]和铜蒸汽激光器^[10]可以运行到几千赫兹, 现在商业上采用的高功率准分子激光器有几百赫兹的重复率。高重复率放大器采用腔倒空氩离子激光器作泵浦源来泵浦增益介质染料。它的关键是在泵浦脉冲过程中, 放大的脉冲两次通过增益介质。利用这种结构, 可在重复率 760kHz 时得到 140nJ 的脉冲能量, 它可

有效地产生二次谐波。

四、飞秒光脉冲的压缩

由于自位相调制和群速度色散，放大的飞秒光脉冲比振荡器输出的脉冲显著加宽。人们可以利用脉冲压缩技术使它重新变窄。为了有效地压缩变换限制的脉冲，必须首先对它的频率进行线性扫描。现在最通用的频率扫描方法是利用介质中的自位相调制。产生自位相调制的最佳介质是光纤波导。

光纤引起脉冲变化的主要原因是群速度色散和非线性位相变化。我们可以把光纤中电场幅度的波方程写为

$$\begin{aligned} \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E}{\partial t} \\ = \frac{i}{2} \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \frac{i\pi}{\lambda n} n_2 |E|^2 |E|. \end{aligned} \quad (4)$$

这个方程的左边描述了群速度 $v_g = \left(\frac{\partial k}{\partial \omega}\right)^{-1}$ 脉冲的自由传播。这里通常是采用慢包络变化近似。在这个方程的右边，第一项表示群速度随时间变化引起的扩散，第二项可认为是非线性速度项或非线性(自位相调制)驱动极化。

对染料激光脉冲的波长，光纤波导处于正常色散范围 $k_2 = \left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}\right)_{\omega_0} > 0$ 。而对变换限制的高斯脉冲，当它通过色散介质时，脉冲宽度将增加

$$\tau_p(z) = \left[\tau_0^2 + \left(\frac{k_2 z}{\tau_0} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (5)$$

而此时，在线性介质中波包的光谱宽度将保持常数，由此产生线性频率调制，低频成分在前高频成分在后，即正啁啾。

再考虑强光下的自位相调制。通常输入光纤中的脉冲宽度 τ_p 大于介质的非线性弛豫时间 τ_r ($\tau_r < 10^{-4}s$)，故为无惯性的非线性效应。由自位相调制引起的频率加宽为

$$\delta\omega(t) = -\frac{\omega_0}{c} n_2 \frac{\partial}{\partial t} (E^2). \quad (6)$$

通过色散和自位相调制，脉冲宽度增加，光谱宽度亦增加，由两者特定组合，可产生最均匀

的频率扫描(啁啾)。

由于光纤波导中 $n_2 > 0$ ，为了压缩通过光纤变宽了的脉冲，必须采用具有反常色散的压缩器。这种压缩器可以是光栅对，也可以是棱镜系统的组合。

间隔为 b 的光栅等效于长度为 b 的反常色散介质。当光束掠入射到光栅上时，可以得到较大的色散值。然而，当脉冲进一步变窄时，脉冲经过光栅的位相变化，高次项将变得重要了。光栅对只能压缩二次位相变化。

采用棱镜对系统，也可以提供反常的群速度色散，而且它的损耗小。它可以通过棱镜相对光轴的前后调节来改变系统的色散特性，从正常色散通过零色散到反常色散。它不但可以补偿二次位相畸变，也可补偿三次位相畸变。它没有脉冲高频和低频成分之间的空间移动，从而消除了由这个移动所引起的脉冲加宽。它的入射光束和出射光束是共线的。

通常由染料放大器系统出来的飞秒光脉冲，由于已经过介质加宽，只需采用光栅对和棱镜系统直接压缩即可，无须再用光纤加宽。

现在飞秒激光系统，其波长可调谐性受到限制，输出功率受到染料的饱和光强 2mJ/cm^2 限制。因此，对波长可调谐性以及飞秒光脉冲在固体介质中的放大进行研究都是很有意义的。此外对光纤孤子和拉曼孤子的研究也是飞秒光脉冲研究的重要方面。还应指出，飞秒脉冲的测量，飞秒光脉冲在空气中的色散都是值得重视的问题。

本文大部分是作者在哥伦比亚大学任博士后研究科学家时完成的。特别感谢 K. B. Eisenthal 教授给予的支持和帮助。

- [1] M. Nakazawa et al., *Opt Lett*, 12-9(1987), 681.
- [2] R. L. Fork et al., *Opt Lett*, 10-2(1985), 131.
- [3] B. Nikolaus et al., *Appl Phys Lett*, 43(1983), 228.
- [4] L. L. Steinmetz et al., *Appl Phys Lett*, 33(1978), 163.
- [5] P. G. May et al., *Opt Commun*, 42(1982), 285.
- [6] R. L. Fork et al., *Appl Phys Lett*, 38(1981), 520.
- [7] R. L. Fork et al., *Opt Lett*, 9-5(1984), 150.
- [8] T. Sizerli et al., *IEEE J. Quant. Electron.*, QE-19 (1983), 506.
- [9] I. N. Duling, *J. Opt. Soc. Amer.*, B2(1985), 616.
- [10] W. H. Knox, *J. Opt. Soc. Amer.*, B4(1987), 1771.