

# 介质中超短光脉冲的自位相调制和光谱超增宽

李庆行 余振新

(中山大学)

**摘要:** 本文描述了介质中超短激光脉冲自位相调制理论, 并讨论了超短光脉冲产生的光谱超增宽、时间分布和脉宽压缩的实验结果。

The ultrashort light pulse self-phase modulation and the spectral superbroadening in optical medium

Li Qingxing, Yu Zhenxin

(Zhongshan University)

**Abstract:** The theory of ultrashort laser pulse self-phase modulation was described and the experimental results of the spectral superbroadening temporal distribution and pulse duration compression in optical medium with an ultrashort light pulse were discussed.

## 一、引言

当一个高强度的超短激光脉冲通过非线性介质时, 能得到一个近似白光的连续光谱脉冲输出, 如图1。这一现象叫做超连续 (SC) 或光谱超增宽 (SB)。1970年, Alfano和Shapiro<sup>[1]</sup>第一次观测到皮秒超连续激光脉冲, 他们用波长为530nm脉宽为8ps的激光脉冲激发非线性介质 (BK-7玻璃等) 得到SC脉冲的波长分布为400nm~700nm。这种超连续激光脉冲具有激发激光脉冲的大部分光学特性 (如脉冲宽度, 相干性等), 故此可作为一种可调谐的宽带超短激光脉冲源, 在光谱学实验中用来测量非线性光学效应<sup>[2]</sup>, 液体和固体中时间分辨吸收光谱<sup>[3]</sup>, 视觉原初过程<sup>[4]</sup>, 光合作用中能量转移过程<sup>[5]</sup>, 半导体中热载流子和激子的驰豫过程<sup>[6,7]</sup>, 等等, 不仅如此, 还可能在物理学、化学、生物学、空间科学、大气科学、光通讯和信息处理等领域得到越来越广泛的应用。

超连续激光脉冲以它优异的特性和诱人的应用前景, 引起人们极大的兴趣。因此, 自1970年以来, 许多学者从实验和理论上对超连续激光脉冲的产生和特性进行了广泛的研究<sup>[8~17]</sup>, 并不断取得新的进展。1986年, Alfano和李庆行等<sup>[14]</sup>用一个弱的(530nm)和

一个强的 (1060nm)超短激光脉冲同时通过凝聚态介质 (BK-7玻璃),第一次观测到感应超连续 (ISC) 现象。1987年, T. Jimbo 和李庆行等<sup>[16]</sup>用金属离子水溶液使SC脉冲强度比水提高5~10倍。光谱超增宽的主要机制通常认为是自位相调制<sup>[19,12]</sup>和四波混频过程<sup>[19,10]</sup>。Yang和Shen<sup>[11]</sup>在时-空坐标直接求解脉冲传播的非线性波动方程,其结果则自动考虑了自位相调制和非共振四波混频效应。本文将用稳相的自位相调制方法进行较为简明的分析。

## 二、超连续脉冲波长的时间分布

### ——自位相调制的理论分析

当一个强的激光脉冲通过一个介质时,使介质的折射率发生变化,折射率变化诱使光波电场的位相变化,而位相变化引起在脉冲包络内部频率扫描,这个过程叫做自位相调制 (SPM)<sup>[19,12]</sup>。

设入射激光束的电场为:

$$E_{in}(t) = \frac{1}{2}E_0(t)e^{-i(\omega_L t - \omega_L z/c)} + C.C. \quad (1)$$

式中,  $E_0(t) = E_0 e^{-t^2/\tau^2}$  为脉冲包络,  $T_0 = (2\ln 2)^{1/2} T$  是脉冲的全半宽度,  $\omega_L$  为激光角频率。激光束在介质中传播一定距离  $z$  之后,在缓变近似下,并略去色散影响,在时间范畴其电场振幅为:

$$E(t) = \frac{1}{2}E_0(t)e^{-i(\omega_L t - n(t)\omega_L z/c)} + C.C. \quad (2)$$

光波的瞬时相位为:

$$\varphi(t) = \omega_L t - n(t)\omega_L z/c \quad (3)$$

其中  $n$  为总折射率,

$$n(t) = n_0 + \delta n \quad (4)$$

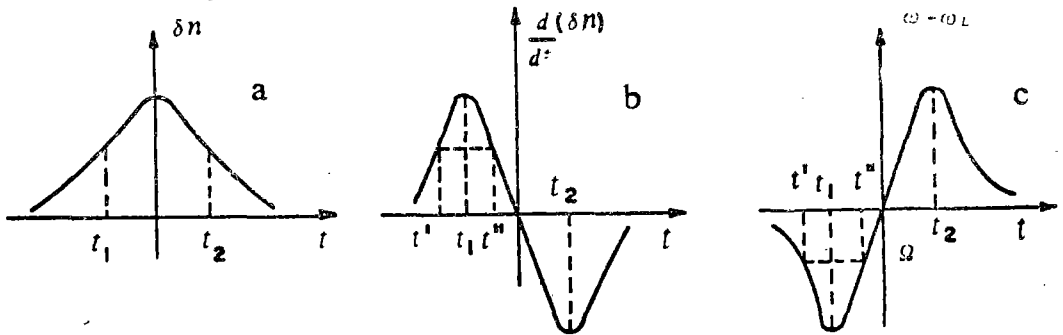


图2 自位相调制 (SPM) 的简单机制  
a—非线性折射率随时间变化 b—非线性折射率随时间变化率与时间关系 c—频率变化与时间关系

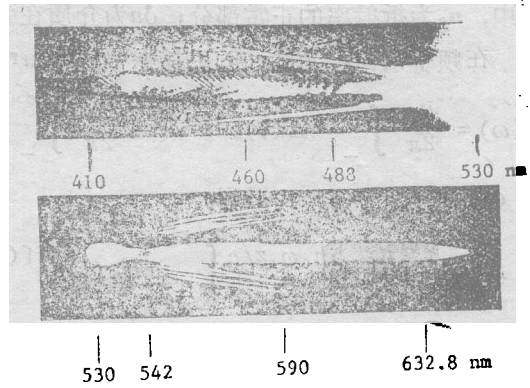


图1 水的Stokes和anti-Stokes超连续光谱中心部分为SPM发射,具有角度分布的外曲线为四光子发射

式中,  $n_0$  为折射率的正常部分,  $\delta n$  为介质在强光场作用下引起的折射率改变部分。

在频率范畴, 光脉冲的电场振幅由Fourier变换得到:

$$E(\omega) = \frac{R_e}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{i\omega t} dt = \frac{R_e}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) e^{-i(\omega_L t - n(t)\omega_L z/c)} e^{i\omega t} dt \quad (5)$$

把(4)式代入(5)式得到:

$$E(\omega) = \frac{R_e}{2\pi} e^{in_0\omega_L z/c} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) e^{i[(\omega - \omega_L)t + \omega_L z \delta n/c]} dt \quad (6)$$

上述积分只有当位相因子

$$\varphi'(t) = (\omega - \omega_L)t + \omega_L z \delta n/c \quad (7)$$

取极值的那些点(临界点)附近的积分才是主要的, 此临界点由  $\frac{\partial \varphi'}{\partial t} = 0$  得到:

$$\omega - \omega_L = -\frac{\omega_L z}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\delta n) \quad (8)$$

在上述近似中, 假定  $\delta n \sim E_0^2(t)$ , 自位相调制的机制示意于图2。最大频率增宽发生在拐点  $t_1$  (Stokes) 和  $t_2$  (anti-Stokes)。

$$\Delta \omega_{max}^s \equiv \omega_s - \omega_L = -\frac{\omega_L z}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\delta n) \Big|_{t=t_1} \quad \text{(Stokes)} \quad (9)$$

$$\Delta \omega_{max}^{as} \equiv \omega_a - \omega_L = -\frac{\omega_L z}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\delta n) \Big|_{t=t_2} \quad \text{(anti-Stokes)} \quad (10)$$

非线性折射率的一般形式为:

$$n(t) = n_0 + \delta n = n_0 + \int_{-\infty}^t f(t', t) E^2(t') dt' \quad (11)$$

式中,  $E(t)$  为激光电场, 并具有高斯型包络  $E_0(t) = E_0 e^{-t^2/T^2}$ ,  $f(t)$  为描述系统响应的权重函数, 假定  $f(t)$

有形式  $e^{-t/\tau}$ ,  $\tau$  为介质响应时间, 对于响应时间慢于纯电子而快于分子取向, 也即是说耦合电子, 分子重新分布, 平动运动 ( $t > \tau > 10/\omega_L$ ) 时, 则有:

$$n(t) = n_0 + \frac{n_2 E_0^2}{2} e^{-2t^2/T^2} \quad (12)$$

$$\text{即 } \delta n = \frac{1}{2} n_2 E_0^2 e^{-2t^2/T^2} \quad (13)$$

把(13)式代入(8)式得最大频率范围

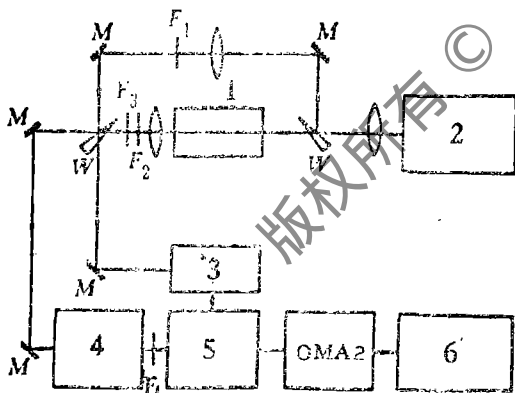


图3 测量超连续激光脉冲时间分布的实验装置简图

W—玻璃劈 M—反射镜  $F_1, F_4$ —中性滤光片,  $F_2, 3(3-67)$ —用于Stokes边的滤光片  $F_2, 3(3-57)$ —用于anti-Stokes边的滤光片  $F_3$ —窄带滤光片 1—样品 2—锁模钛玻璃激光器 3—触发 4—光延迟 5—超高速扫描摄影机 OMA2—2型光学多道分析器 6—记录器(取自参考文献) [13]

为:

$$\left| \Delta \omega_{\text{max}} \right| \sim \frac{\omega_L}{(2 \ln 2)^{1/2} T_p c} n_2 E_0^2 Z \quad (14)$$

现在把以上计算与李庆行等<sup>[13]</sup>的实验相比较, 其实验装置如图3所示。一个波长为530nm, 脉宽为3ps的Gaussian型激光脉冲分成两束, 一束为主束(M-beam), 通过池长20cm的CCl<sub>4</sub>样品, 用以产生超连续脉冲; 另一束为参考束(R-beam)用以提供相对时间基准。测量主束与参考束之间的时间差, 得到超连续脉冲光谱各波长的时间分布, 修正了滤光片的光学延迟和在CCl<sub>4</sub>中的群速度色散后的结果示于图4。Stokes和anti-Stokes频移分别出现在激发脉冲的前沿和后沿, 实线为 $\omega - \omega_L = -\frac{\omega_L z}{c} \frac{d}{dt}(\delta n)$ 的理论曲线, 可见实验与理论

符合得相当好, 这个结果支持SPM是超连续脉冲产生的主要机制的理论模型。在图4B中+5~+10ps和从-5~-10ps没有实验数据点, 是因为SPM信号强度很弱, 难以测量。例如, 按理论计算, 频移 $\Delta\omega = (\omega - \omega_L) 2\pi c = 2000 \text{cm}^{-1}$ , 可以在+1ps和+6.5ps处产生, 但入射激光脉冲强度 $|E(t=1\text{ps})|^2 \approx 6 |E(t=6.5\text{ps})|^2$ , 可见在入射激光脉冲远翼产生的SPM信号确实太弱了, 现在用的仪器灵敏度无法观测到。

### 三、超连续脉冲的各波长的角分布 四光子参量产生(FPPG)过程

当一个强超短激光脉冲通过介质时, 产生的超连续脉冲, 除了中心部分的SPM光谱以外, 其两旁伴有角度分布的光谱, 如图1所示。不同波长的光其发射角也不同, 这是四光子参量产生(FPPG)过程, 显示角度发射的实验装置, 如图5。四光子过程是激光光子与正负频率扫描光子相互作用产生的, 具有图6的型式。在精确位相匹配条件下,  $2\vec{K}_L - \vec{K}_s - \vec{K}_a = 0$ , 式中 $\vec{K}_L, \vec{K}_s$ 和 $\vec{K}_a$ 分别为激光束Stokes频移光子和anti-Stokes频移光子的波矢量, 沿位相匹配角方向弱波( $\vec{K}_s$ 和 $\vec{K}_a$ )将得到最大放大。

这种四光子过程所得到的Stokes和anti-Stokes波的放大与Raman过程不同, 它不属于需要相干光学声子作为中间步骤的两步Raman过程, 因为Raman过程中发射的频率是确定的, 而在四光子过程中, 在Stokes和anti-Stokes两边频移从0至6000cm<sup>-1</sup>是连续

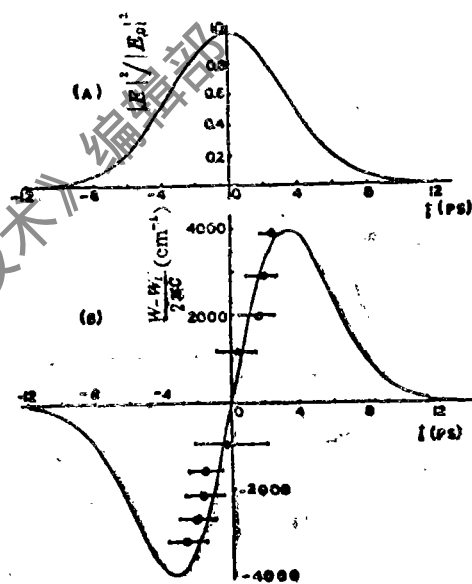


图4 测量的超连续脉冲的时间分布与SPM理论模型比较

(A) 高斯型(FWHW8ps)入射激光脉冲理论曲线, 纵坐标为任意强度单位, 折射率变化与入射脉冲有相同时间轮廓 (B) 测量在CCl<sub>4</sub>中的超连续频率变化与SPM模型比较, (B)中的时间轴与(A)中的相同, 纵坐标为超连续频移, 图中数据已修正了滤光片的光路和在CCl<sub>4</sub>中的群速度色散, 实线是按(8)式计算所得(取自参考文献<sup>[13]</sup>)

发生的，同时Stokes和anti-Stokes发射的强度几乎相等。

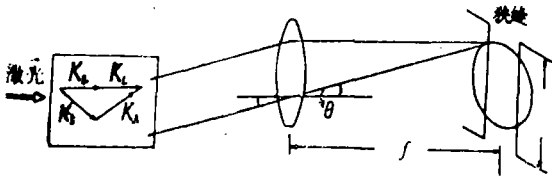


图5 显示作为波长和角度函数的  
的FPPG的实验装置

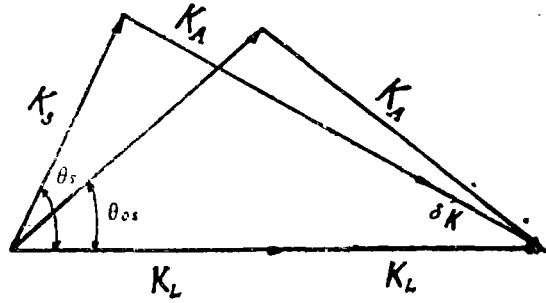


图6 四光子参量产生中的波长关系

在一个给定的频率有一个发射角宽度 $\delta\theta$ ，这是动量失配造成的，在图6的矢量三角形中，我们假定 $\theta_s = \theta_{0s} + \delta\theta$ ，于是：

$$K_s^2 + 4K_L^2 - 4K_L K_s \cos\theta_{0s} = K_A^2 \quad (15)$$

$$K_s^2 + 4K_L^2 - 4K_L K_s \cos\theta_s = (K_A + \delta K)^2 \quad (16)$$

解以上方程得：

$$\theta_{0s} = \cos^{-1}[(K_s^2 + 4K_L^2 - K_A^2) / 4K_L K_s] \quad (17)$$

$$\delta\theta \approx \frac{\delta K}{2K_L \sin\theta_{0s}} \quad (18)$$

#### 四、超连续脉冲的压缩

当入射的激光脉冲宽度为8ps时，其所产生的整个超连续脉冲宽度约为30ps，但若从中选出10nm带宽的脉冲，其宽度约 $6.4 \pm 0.6 \text{ps}^{-10}$ ，比入射脉冲短。一些实验工作，如利用时间分辨吸收光谱研究生物学、化学和固态物理中的超快速过程时，通常希望有波长宽度和脉冲宽度都很窄的光脉冲作为探测光源。此时可用窄带滤光片从整个超连续脉冲中选出一部分加以压缩而满足应用的需要，典型实验装置如图7所示，其细节可查阅参考文献[18,19]，其压缩比可以由图8的简单几何关系推得，设光通过ABC路程的时间 $\tau$ 为：

$$\tau = [b + b \sin\theta \sin\gamma] / c \quad (19)$$

$$\text{则 } \frac{\Delta\tau}{\Delta\lambda} = \frac{1 + \sin\theta \sin\gamma}{c} + \frac{\partial b}{\partial \lambda} + \frac{b \cos\theta \sin\gamma}{c} \frac{\partial b}{\partial \theta} \quad (20)$$

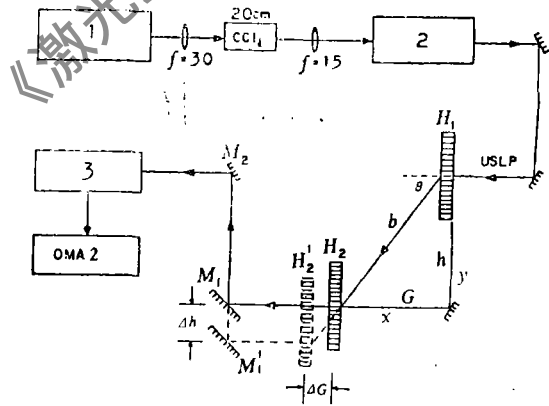


图7 超连续光脉冲压缩器简图

$H_1, H_2$ —一体位相透射全息光栅  $b, G$ —光栅对的斜线距离和平行距离  $\theta$ —衍射角  $\gamma \neq 0$ —入射角 1—锁模钛玻璃激光器 2—光延迟 3—超高速扫描摄影机 OMA2—2型光学多道分析器 USLP—超快超连续激光脉冲

由光栅方程,

$$\lambda = d (\sin\theta + \sin\gamma) \quad (21)$$

其中光栅常数  $d = \text{mm}/1130$  条, 由 (21) 式得:

$$\frac{\partial\theta}{\partial\lambda} = \sec\theta/d \quad (22)$$

$$\frac{\partial b}{\partial\lambda} = G \sec^2\theta \tan\theta/d \quad (23)$$

把 (22) 与 (23) 式代入 (20) 式得:

$$\frac{\Delta\tau}{\Delta\lambda} = b(\lambda/d)/cd[1 - (\frac{\lambda}{d} - \sin\gamma)^2] \quad (24)$$

在垂直入射时  $\gamma = 0$ , 得:

$$\frac{\Delta\tau}{\Delta\lambda} = b\lambda/c(d^2 - \lambda^2) \quad (25)$$

由 (25) 式可见压缩因子  $\Delta\tau$  (压缩前后脉冲宽度差) 随光栅对斜线距离  $b$  而变化。

当置  $b = 9.6 \text{cm}^{[19]}$ , 用窄带滤光片从整个超连续脉冲中选出  $\lambda = 620 \text{nm}$ ,  $\Delta\lambda = 10 \text{nm}$  部分进行测量时, 得压缩前脉宽为  $6.4 \pm 0.6 \text{ps}$ , 压缩后脉宽为  $2.3 \pm 0.3 \text{ps}$  (条纹照相机分辨率为  $2 \text{ps}$ ), 扣除仪器响应的卷积后的脉宽为  $1.1 \pm 0.3 \text{ps}$ , 即压缩前后脉冲宽度差为  $5.3 \pm 0.7 \text{ps}$ 。把  $b, \lambda, \Delta\lambda$  值代入 (25) 式得计算值为  $4.98 \text{ps}$ , 与实验值颇为一致。

图9示出  $\lambda = 620 \text{nm}$ ,  $\Delta\lambda = 10 \text{nm}$  超连续脉冲压缩前后的脉冲轮廓<sup>[19]</sup>。

### 参 考 文 献

- [1] Phys.Rev.Lett., 1970, Vol.24, P.584, 592, 1219.
- [2] C.S.Goldberg, Picosecond Phenomena III, 1982, P.94.
- [3] Chem.Phys.Lett., 1971, Vol.8, P.631.
- [4] Am.Lab., Nov., 1980.
- [5] Biochem.Biophys.Acta, 1978, Vol.246, P.501.
- [6] Phys.Lev., 1982, Vol.B25, P.6534.

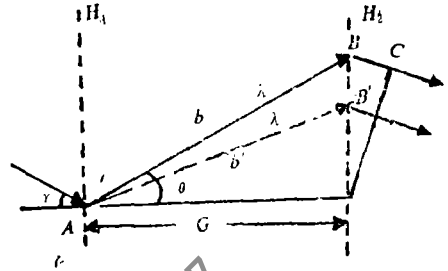


图8 当入射角  $\gamma \neq 0$  时, 光束在平行全息光栅对中的传播

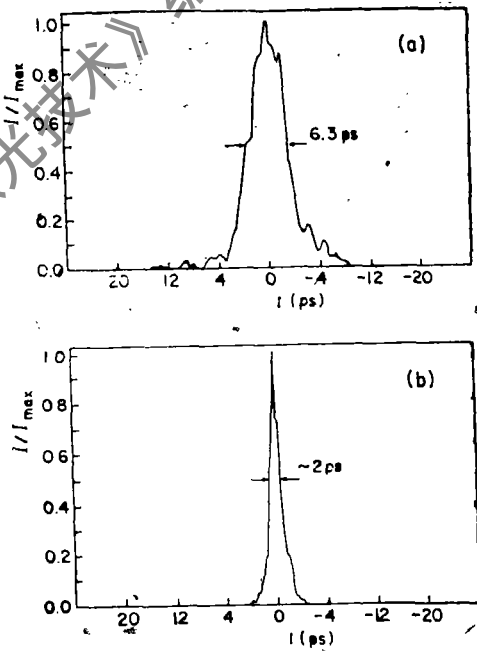


图9 中心波长  $\lambda = 620 \text{nm}$ , 波长宽度  $\Delta\lambda = 10 \text{nm}$  的超连续激光脉冲轮廓 (a) 压缩前脉冲轮廓 (b) 压缩后脉冲轮廓 (取自参考文献<sup>[19]</sup>)

- (7) SPIE, 1985, Vol.524, P.95.
- (8) Opt.Lett., 1983, Vol.8, No.1.
- (9) Opt.Comm., 1973, Vol.8, P.285; Phys.Rev., 1977, Vol.A15, P.2396.
- (10) Phys.Rev.Lett., 1975, Vol.31, P.863; Opt.Comm., 1974, Vol.11, P.265; Opt.Comm., 1975, Vol.14, P.363; Opt.& Quant. Electron., 1977, Vol.9, P.315.
- (11) Opt.Lett., 1984, Vol.9, P.510.
- (12) IEEE.J.Q.E., 1986, Vol.22, P.107.
- (13) Appl.Opt., 1986, Vol.25, P.1869.
- (14) Opt.Lett., 1986, Vol.11, 626.
- (15) Phys.Rev., 1987, Vol.A35, P.459.
- (16) Opt.Lett., 1987, Vol.12, P.477.
- (17) Phys.Rev., 1986, Vol.A33, P.1765.
- (18) Appl.Opt., 1985, Vol.24, P.2021.
- (19) Appl.Opt., 1987, Vol.26, P.2700.

\*

\*

作者简介：李庆行，男，1937年8月出生。副教授，硕士生导师，中山大学激光与光谱学研究所副所长。1983~1986年在美国纽约市立大学市立学院超快速激光光谱学研究所担任研究员近三年，现从事时间分辨光谱学及非线性光学研究。

余振新，男，1938年11月出生。教授，博士生导师，中山大学超快速激光光谱学国家重点实验室主任，激光与光谱学研究所所长。1980~1982年在美国纽约市立大学物理系任研究员二年。现从事超短脉冲激光与时间分辨光谱学研究。兼任中国光学学会基础光学委员会委员，美国光学学会会员。

收稿日期：1988年12月21日。

· 简 讯 ·

## 多模Nd : YAG激光器“绿光难题”已获解决

日本索尼公司的研究人员改进了一种腔内倍频技术，从而减少了多模Nd : YAG激光器倍频绿光输出的波动（即“绿光难题”）。他们在腔内插入一个 $1/4$ 波片，使腔内光偏振。当偏振方向与KTP倍频晶体的寻常光和非常光成 $45^\circ$ 时，便得到稳定的绿光输出。在5MHz时，与频率相当的信噪比增加到80dB之多。研究人员利用在 $45^\circ$ 取向的情况下和频影响抵消来解释他们的结果。他们在1988年10月的Opt. Lett., 上介绍了这项工作。

摘自L.F./E.-O., 1988, Nov., P.10.

杨友濂 译 刘建卿 校