

飞秒光谱技术的现状与展望

刘 天 夫

(中国科学院长春物理研究所, 长春 130021)

自 1981 年 R. L. Fork 等人利用环型腔可饱和吸收体的对撞锁模技术首次产生了飞秒(10^{-15} s)激光脉冲后,多频段飞秒光脉冲的产生、放大、频率扩展及光脉冲压缩等技术的发展十分迅速.目前在物理学、生物学和化学等各领域,利用飞秒光谱技术观测各种原初过程以及超快速现象,已经成为一种崭新而有效的研究手段,越来越受到各国科学家的高度重视.本文介绍了飞秒光源的现状、飞秒光谱的主要测量方法以及飞秒光脉冲放大、压缩等技术的基本原理,并对飞秒光谱技术的未来发展及应用前景进行了讨论.

In 1981 Fork and coworkers used the technology of colliding pulse mode-locking (CPM) in ring-cavity saturable absorption to generate a femtosecond laser pulse for the first time. Since then, the technology of femtosecond light pulse generation, amplification and compression in several frequency ranges has developed rapidly. As a new and effective tool in observing primary processes and ultra-fast phenomena in physics, biology and chemistry, femtosecond spectroscopy has drawn more and more interest. This paper reviews recent progress and the main detection method of femtosecond spectroscopy as well as basic principles of the amplification and compression of the femtosecond laser pulse. We also discuss the future progress and applications of femtosecond spectroscopy.

飞秒即是 10^{-15} s (通常也称 fs). 利用飞秒光谱技术,对物质微观结构随时间变化规律的研究,是揭示物质本质十分重要而有效的研究方法.例如在阐述物质飞秒动力学过程的尝试中,需要对其超快的分子弛豫,电子跃迁等过程有较充分的了解,进而导出与时间有关的新见解或新的模型.又如目前在生物医学方面,利用飞秒光谱技术观测细胞的原初过程,或者利用飞秒光学测距技术,测量激光切割角膜深度或皮肤的成分和厚度等许多方面,都得到了重要的应用.

近年来,由于飞秒激光技术的迅速发展,飞秒光谱技术在各有关研究领域的应用,越来越受到广泛的重视.

一、飞秒光谱的测量方法^[1]

1. 自相关法

物理

目前对于 fs (10^{-15} s) 量级的脉冲形状或宽度的测量,主要采用二次谐波 (SHG) 法和双光子荧光 (TPF) 法.所谓二次谐波法是利用非线性晶体的倍频原理,通过类似于迈克耳孙干涉仪的光学装置把待测光分成两束,使其中一束光的光程固定,另外一束光作微振动(通常由微动电机或扬声器的音圈带动反射镜实现).这样使往返作微振动的两束光照射到非线性晶体(如 ADP, KDP 等)上,通过调整晶体的角度或改变晶体的温度,使它满足倍频位相的匹配条件,产生二次谐波.通过对二次谐波的测量,可以得到待测光脉冲的宽度.

由于二次谐波法的实质是把时间的测量转换成长度的测量,而且测得的二次谐波是相对值,因此 SHG 法不需要快速光电探测器和电子仪器,就能够达到飞秒量级的分辨率.配合适当的电子线路还可以实现自动化测量,因此 SHG 法是目前飞秒领域中常用的测量方法.

所谓双光子荧光法是利用某些荧光物质具有能够同时吸收两个光子,然后辐射出一个能量较大的光子(即双光子荧光的特性),来测量超短光脉冲的宽度。基于这样的原理,我们可以利用分束镜、反射镜把待测的光脉冲分成两束光,并使它共线反向地照射到盛有染料溶液的样品池上。于是在染料溶液中,两个光脉冲的通路将会发出均匀的弱荧光,而在两个光脉冲重叠处,则因双光子吸收而产生极强的双光子荧光。理论和实验均已证明:两个光脉冲重叠部分和非重叠部分荧光强度之比为 3:1。利用分光光度计分析染料溶液的光强分布,就可以计算出待测光脉冲的宽度,这种方法简单,而且适用于单次或非周期光脉冲信号的测量。但是由于技术条件的限制,它的最高时间分辨率只能做到亚皮秒(10^{-13} s)量级。

此外,由于近来条纹相机偏转扫描速度和抖动抑制等技术指标的提高,最近有亚皮秒(10^{-13} s)分辨率的同步条纹相机问世,这是迄今唯一的一种飞秒量级直读式测量仪器。

2. 双光束探测法

双光束探测法亦称泵浦-探测法。它是通过观测样品被激发后不同时刻透过样品的探测光强度或偏振等变化的情况,获得飞秒过程有关信息的测量方法。实验中,两束光以不同角度照射样品,其中较强的一束飞秒脉冲光作泵浦源激发样品,另外较弱的一束作探测光,探测样品在激发后不同时刻的吸收系数或折射率的变化情况,从而得到样品的飞秒弛豫过程特性。

根据实验的需要,可以由泵浦光分束作为探测光,也可以用泵浦光经压缩、放大后产生的宽频带白色超短脉冲光作探测光。对探测光相对延迟时间的控制,一般是通过采用不同膜厚的中性滤光片实现。由于镀膜厚度可以精确地控制在 μm 量级,所以探测光的相对延迟时间可以在飞秒量级范围内变化。双光束探测法是目前测量飞秒分时光谱的主要方法之一。

3. 光混频法

光混频法是把样品的发光信号和经分束延迟的飞秒泵浦光信号,同时加到非线性晶体(例

如 LiIO_3)中混频,并测量由此产生的和频或差频的光信号,从而得到样品的飞秒光谱信号。由于只有当样品的发光信号和经过延迟的飞秒泵浦光信号在晶体中(如 LiIO_3)重叠时,才能发生两种光波之间的耦合,产生非线性混频效应,因此这种方法的时间分辨率原则上只取决于飞秒泵浦光的脉冲宽度。利用光混频法测量样品的分时光谱时,只需通过角度或温度的调节,使非线性晶体满足混频的相位匹配条件即可测得实验结果。

光混频法的主要缺点是转换效率低,需要功率较大的飞秒脉冲光源。但是,由于光混频法的探测灵敏度高,波长范围大,特别是它可以把红外信号转变成可见光测量,因此许多半导体材料红外波段的飞秒光谱特性的研究工作,大都采用这种方法,并得到了满意的结果^[2]。

二、飞秒脉冲光源的现状

1. 飞秒脉冲激光器的种类和特点

表 1 归纳了目前飞秒光脉冲的几种主要产生方法。自 1981 年首次出现环形腔碰撞锁模飞秒染料激光器(即 colliding pulse mode-lock, CPM)^[3]以来,各种类型的飞秒脉冲激光器发展十分迅速。但是到目前为止,如表 1 所示那样 CPM 仍然是其中最主要的飞秒光源。它的结构如图 1 所示,泵浦源采用 CW 氩离子激光器。

CPM 飞秒激光器的输出波长取决于增益介质 R6G (Rhodamine 6G) 的荧光特性,一般在 612—630nm 之间。重复频率 f 取决于腔长 L , $f = \frac{c}{2L}$, 即纵模以间隔 $c/2L$ 分布于

染料 R6G 的振荡线宽 $\Delta\nu$ 中,式中 c 为光速。CPM 输出脉冲宽度能达到 fs 量级,主要有两个方面的原因。一方面由于谐振腔内插入了染料 DODCI,因它具有可饱和吸收特性,使谐振腔内光脉冲的前后沿部分因能量较弱被 DODCI 吸收,只有脉冲顶部能量较大部分容易透过染料。如此循环,使光脉冲压窄。另一方面,由

表1 飞秒光源的种类和特点

1. CPM 碰撞锁模染料激光器		
种类	脉宽及波长	特点
(1) 谐振腔内插入四块棱镜的 CPM 激光器 ^[7]	27fs, 634nm	●使用四块棱镜补偿,能产生最短光脉冲,调整复杂
(2) 腔内有一对 G-T 干涉仪的 CPM 激光器 ^[8]	82fs, 626nm	●腔内采用两组反射型标准具,波长变化范围大
(3) 腔镜具有啁啾补偿特性的 CPM 激光器 ^[9]	48fs, 635nm	●腔镜中的一枚具有啁啾补偿特性,调整容易
2. 其他种类的飞秒激光器		
(4) 线性腔混合同步 HML 激光器 ^[10]	69fs, 583nm 55fs, 675nm	●使用两块棱镜和小孔光阑,YAG 2 ω 泵浦
(5) 可调谐: E110 + DASBT1 线性共振型: R6G + DASBIT 被动锁模: (SR101 + R6G) + DOTCI 同步锁模 ^[11] :R700 + HITCI R700 + (DOTCI + DCI)	\sim 150fs, 553—570nm \sim 500fs, 570—600nm \sim 120fs, 652—694nm \sim 850fs, 762—778nm 350~850fs, 727—740nm	●使用可调谐元件,黄绿-橙可调谐 ●使用可调谐元件,橙-红可调谐 ●使用可调谐元件,深红可调谐 ●使用可调谐元件,近红外可调谐,Kr ⁺ 泵浦. ●使用可调谐元件,近红外可调谐,Kr ⁺ 泵浦.
(6) 孤子激光器 ^[6]	\sim 60fs, 1.52 μ m	●使用色心激光器泵浦,光纤产生孤子脉冲并反馈回馈谐振腔.
3. 光脉冲压缩		
飞秒光源类型	压缩后的脉宽及其他	放大器及脉冲压缩器
(7) 65fs CPM 激光器 ^[12]	16fs, 8Hz	●用调 QYAG 泵浦,两级染料放大,输出 77MW, 10Hz, 光纤长 8cm
(8) 110fs CPM 激光器 ^[13]	12fs, 6Hz 谱线宽 41nm, 输出 0.5MW	●调 Q 同步锁模 YAG 泵浦,两级染料放大,增益 10 ⁴ , 500Hz, 光纤长 15cm
(9) 插入四块棱镜,并使用腔倒空器的 CPM 激光器 ^[14]	8fs, 3.8Hz 谱线宽 70nm	●铜蒸气激光器泵浦,两级染料放大,输出 1MW, 5kHz, 光纤长 7cm

于谐振腔内左旋和右旋脉冲光在超薄 DODCI 液膜内对撞的结果(如图 1 所示,插入腔内的染料液膜是通过喷嘴实现的,DODCI 染料喷嘴厚度越薄越好,一般为 30 μ m 左右,R6G 染料喷嘴厚度为 300 μ m 左右),使两脉冲光在膜内发生干涉作用,在相关区形成瞬态布居 (populating) 衍射光栅,从而在空间半周期内产生更强的吸收调制效果,使光脉冲得到进一步压窄,最终形成稳定的飞秒光脉冲输出。这类激光器,即使腔内不加色散补偿棱镜也能产生脉宽小于 100fs 的激光^[4]。

从表 1 可以看到,除了 CPM 之外,还有许多其他类型的飞秒激光器。其中有代表性的是主动锁模飞秒激光器,它的特点是激发染料的泵浦光也是超短脉冲光。由于这种泵浦光峰值功率高,能量密度大,因此对那些荧光寿命短、

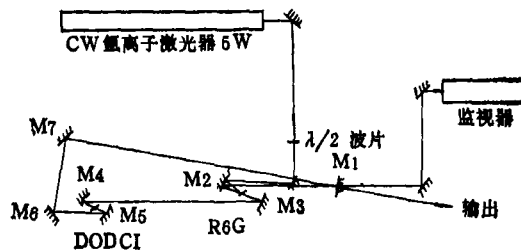


图1 CPM 碰撞锁模染料激光器原理图

M₁, M₂: r = 2.5cm, 喷嘴厚 30 μ m;
M₃, M₄: r = 5cm, 喷嘴厚 300 μ m

阈值高和增益低的染料十分有利,从而扩大了飞秒光源的波长范围。对于主动锁模激光器,须注意谐振腔长的选择,使它的周期 (c/2L) 严格地与泵浦光同步,即使因温度等因素使腔长有 μ m 量级的变化也会严重影响输出的稳定性。另外,如果泵浦光功率过高,会出现新的

非周期脉冲光影响输出的稳定性。为了克服这些缺点,常常采用主被动混合锁模方式的飞秒激光器,如表 1 所示。此外,自 1973 年 Hasegana 等人从理论上提出了利用光纤的非线性效应,压缩由于色散而展宽的超短光脉冲以后^[4],1984 年由 Mollenauer 等人利用锁模色心超短脉冲激光器,通过光纤产生了孤子脉冲,并将其反馈回谐振腔,制成了第一台孤子脉冲激光器^[6],它的波长范围在 1.35—1.75 μm。由于孤子脉冲激光器输出脉宽极其稳定,并且通过改变光纤长度或输入功率可以控制输出脉宽,因此近年来它在光通信方面的应用研究也十分活跃。但是从目前看来,孤子激光器只能在红外波段实现,因为在其他波段还不具备有负色散特性的光纤。

2. 飞秒脉冲压缩

自 1982 年, C. V. Shank 等人成功地采用腔外压缩技术,把 90fs 的脉冲光压缩到 30fs 之后^[43],有关飞秒脉冲压缩技术的研究工作十分活跃。1987 年, C. V. Shank 等人又在原有光脉冲压缩器基础上,利用棱镜对三次极化引起的色散进一步补偿,得到迄今为止最短的 6fs 光脉冲^[46]。

目前,光脉冲压缩技术广泛用于飞秒激光器输出脉宽的进一步窄化方面,并推动了飞秒脉冲光源的进步和发展。一般说来,介质都具有不同程度的色散性质,而飞秒量级脉冲光在介质传播过程中,因色散引起脉冲加宽的影响更不容忽视。光脉冲压缩器的作用,正是设法补偿这种影响,窄化脉冲的宽度。

图 2 示出了光脉冲压缩器的原理图,一般它是由单模保偏光纤和一对光栅组成,实际上它是一种扫频脉冲的压缩方法。

由于脉冲的宽度和频宽成反比,即脉宽越窄,它的频宽越宽,因此为了使脉冲窄化,首先必须设法扩展它的频宽。在图 2 中,光脉冲的频宽扩展是通过光纤来实现的。我们知道,在强光作用下,光纤折射率的变化正比于脉冲光频电场的平方(即 $n = n_0 + n_2 \langle E^2(t) \rangle + \dots$)。因此,由于入射光脉冲包络不同时刻的电场能

量(光强度)的变化,将引起折射率的相应变化,从而相位速度也随之发生变化,并使脉冲包络的不同部位具有不同的即时频率,产生所谓的啾啾(chirp)。因此,光脉冲的波长受到了频率的调制。这种现象,通常也称为自相位调制(self phase modulation, SPM)。

由于光纤的 SPM 作用,光脉冲前沿部分的波长与中心波长相比发生了红移,而后沿则发生了蓝移。因此使光脉冲频带展宽并成为所谓的扫频脉冲光。当这种扫频脉冲光通过反常色散介质时(此时介质对短波成分传播速度快,对长波成分传播速度慢),就得到脉宽的压缩。

图 2 中的光栅对,就是一种具有反常色散的装置。由于扫频脉冲光的前沿相对于中心波长为长波成分,所以通过光栅对时,延迟时间长,而后沿相对中心波长为短波成分,则延迟时间短。因此,经光栅对输出后,使光脉冲的前后沿相互逼近,脉宽得到窄化,这就是光脉冲压缩器的基本原理。

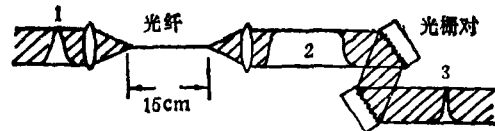


图 2 光脉冲压缩器原理图

1. 输入光脉冲; 2. 谱线宽扩展; 3. 被压缩的光脉冲输出

3. 飞秒光放大

为了使飞秒光源具有足够大的功率输出,常常需要对飞秒激光器输出的脉冲光进行放大。图 3 示出了四级染料激光放大器的方框图。由图可以看出,欲放大的飞秒脉冲光相继通过四个循环染料池,得到四级放大,因此放大器的增益可达 10^6 左右。

它的放大过程是,当输入光通过处于激发态的染料溶液时,由于产生受激辐射使输入光得到放大,这就是光放大器的基本原理^[47]。因此,为了得到高增益的放大,应选择具有较大受激辐射几率的染料作为放大介质。但是,这类染料同时也具有较高的自发辐射几率,使一部分泵浦能量因消耗在自发辐射上而产生荧光。如果产生的荧光再经放大,会形成超辐射(通常

也称 amplified spontaneous emission, ASE), 成为放大器的荧光背景噪声, 严重破坏了放大器的性能。通常为克服 ASE 的影响, 在放大器的级间插入小孔光阑以及由喷嘴 S_{1-3} 产生的染料液膜。由于选用的染料具有可饱和吸收特性, 并且恢复速度快, 因此能有效地吸收放大器的荧光背景噪声。

另外, 各级放大池中染料的选择和浓度的搭配, 对抑制荧光背景噪声也十分重要。特别是一、二两级放大池的染料, 应尽量选择谱峰不重叠、又很相近的两种染料做放大介质。但是, 由于放大器增益高, 所以很难彻底消除荧光背景噪声。为了尽可能地减小 ASE 的影响, 最近有采用超短脉冲光作放大器泵浦光源的报道。此时, CPM 的泵浦光源和放大器的泵浦光源都采用同一个 Nd:YAG 激光器, 这样就保证了严格的同步关系。利用 Nd:YAG 的二次谐波 532nm, 单脉冲能量为 50mJ, 脉宽为 100 ps, 重复频率为 10Hz 的再生放大光, 作飞秒放大器的泵浦光源。从而, 进一步有效地抑制了 ASE 的影响, 得到荧光背景噪声在 10^{-5} 以下和增益为 10^6 的实验结果^[15]。

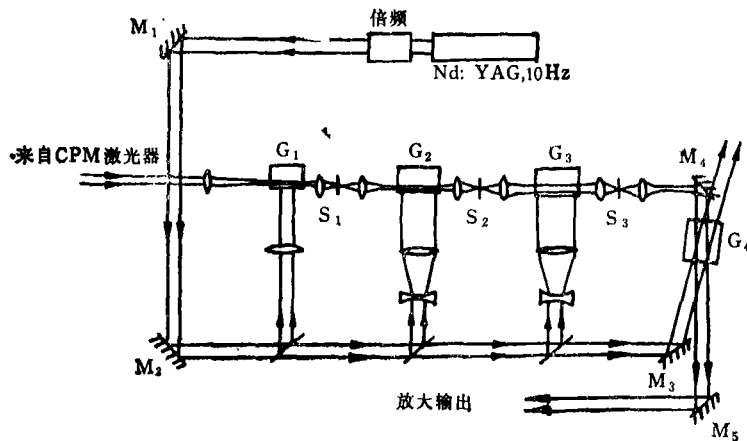


图3 四级染料激光放大器原理图
 G_1, G_2, G_3, G_4 为染料池; S_1, S_2, S_3 为染料喷嘴

4. 超短白光脉冲的产生

如果把峰值功率极高的皮秒或飞秒光脉冲, 经聚焦后打在装有酒精或水等透明样品上时, 由于极强的非线性四光子参量效应, 能够产生由紫外至红外波长范围的白色连续光脉冲。

物理

白光的脉冲宽度基本上和激发光脉冲的宽度是同一量级^[19]。

产生白光的泵浦功率阈值, 与激发光脉冲的波长有关。例如采用 Nd:YAG 二次谐波 532nm, 重复频率为 30Hz 的皮秒脉冲光, 当功率超过 10^{11}W/cm^2 时, 聚焦后照射酒精等透明样品, 就可以产生波长在 200nm~2 μm 的皮秒脉冲白光, 转换效率在 10% 左右。

目前, 飞秒白光脉冲主要用于两个方面。一是在双光束探测法中把它作为探测光使用。由于它的波长范围宽, 探测信息量大, 所以容易获得满意的实验结果。另一方面, 也可以通过分光, 选择所需要的波长, 经放大后作飞秒泵浦光源使用, 从而扩大了飞秒光源的波长范围。

三、今后的展望

飞秒光谱技术的发展, 主要依赖于飞秒光源和超快探测仪器的进步和发展。尽管目前它们的发展很不平衡, 直接测量飞秒光信号的仪器还不多, 但是由于超短脉冲激光器的飞速发展, 极大地促进了飞秒光谱技术在各研究领域中的应用。

近年来由于孤子激光器的出现, 使得输出光脉冲的宽度和光谱控制能够得以实现。今后, 随着材料科学的发展, 若能制成在短波长范围内具有反常色散特性的单模光纤, 实现从可见到紫外波段的孤子脉冲激光器也是完全可能的。

到了 21 世纪, 脉冲激光器还能窄到什么程度, 在极限窄的光脉冲作用下, 超快

瞬态光谱的研究中, 会产生什么样的实验结果等等, 都是人们十分关切的问题。我们知道, 无论采用什么方法压缩, 不同波长的光脉冲, 其脉宽可能最窄的极限值是波长的半个周期。例如, 中心波长为 600nm 的激光, 它可能产生的

评介《量子力学的基本概念》

(关洪, 高等教育出版社, 北京, 1990)

王正行

(北京大学技术物理系, 北京 100871)

《量子力学的基本概念》是高等教育出版社1990年8月出版的一本高等学校教学参考书(全书共271页, 定价2.40元)。尽管国内量子力学教科书和参考书已经不少, 但详尽地从物理上来讨论量子力学基本概念的书, 这还是第一本。作者关洪长期执教量子力学, 并有深厚的研究功底。他在60年代初就活跃在粒子物

理研究领域, 是著名的北京基本粒子理论组成员之一, 参与了创立和发展层子模型的主要过程, 70年代以来又把研究拓宽到量子力学基础、物理学史、物理学中的自然哲学问题以及物理学的教学等众多领域, 成绩显著。他对量子力学测不准关系的深入分析, 得到我国物理学界的广泛重视。这本书就是他在量子力学基础

极限最窄脉冲宽度是1fs;若中心波长是100nm时, 为167as ($1\text{as} = 10^{-18}\text{s}$);若中心波长是10nm时, 为17as。由此看来, 到了21世纪, 如果能够实现X射线激光器的运转, 产生100as的窄脉冲光是完全可能的。

然而, 根据测不准原理, 脉冲宽度越窄, 谱线线宽则越宽。由关系式 $\Delta\nu \cdot \Delta t = 1$ 可知, 具有几个fs的激光脉冲, 其谱线线宽可达100nm以上。这时, 不仅光源失去了单色性, 而且群速度色散的影响也不容忽视了。例如, 10fs的脉冲光, 通过1mm厚的玻璃时, 足以使脉冲宽度展宽两倍以上。另外, 由于极高的能量密度, 使光和物质的相互作用大大增强, SPM等非线性影响更加严重, 使测量的结果更加复杂化。尤其当光脉冲窄到和光波的一个周期相近的时候, 在此之前所有那些理所当然的假设条件不复存在, 仍旧利用原有的近似理论去分析光和物质相互作用的动力学过程, 是否能够得到新的实验结果, 这也是今后需要探讨的课题。

本文得到黄世华同志的有益帮助, 在此表示感谢。

[1] 刘天夫, 物理, 19(1990), 357.

- [2] J. Shah, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-24**(1988), 276.
- [3] R. L. Fork et al., *Appl. Phys. Lett.*, **38**(1981), 671.
- [4] 青岛, 土屋, *激光研究*, **14**(1986), 316.
- [5] A. Hasegana and F. Tappert, *Appl. Phys. Lett.*, **23**(1973), 142.
- [6] L. Mollenauer, *Opt. Lett.*, **9**(1984), 13.
- [7] J. A. Valclmanis and R. L. Fork, *Opt. Lett.*, **10**(1985), 131.
- [8] J. Heppner and J. Kuhl, *Appl. Phys. Lett.*, **47**(1985), 453.
- [9] M. Yamashita and M. Ishikawa, *Opt. Lett.*, **11**(1986), 504.
- [10] M. D. Dawson and T. F. Boggess, *Opt. Lett.*, **11**(1986), 721.
- [11] K. Smith and N. Langford, *Opt. Lett.*, **10**(1985), 559.
- [12] J. G. Fujimoto and A. M. Weiner, *Appl. Phys. Lett.*, **44**(1984), 832.
- [13] J. M. Halbout and D. Grischkowsky, *Appl. Phys. Lett.*, **45**(1984), 1281.
- [14] W. H. Knox and R. L. Fork, *Appl. Phys. Lett.*, **48**(1985), 1120.
- [15] C. V. Shank and R. L. Fork, *Appl. Phys. Lett.*, **40**(1982), 761.
- [16] R. L. Fork and C. H. Brito-Cruz, *Opt. Lett.*, **12**(1987), 483.
- [17] W. H. Knox, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-24**(1988), 388.
- [18] M. D. Perry and O. L. Landen, *Opt. Lett.*, **14**(1989), 42.
- [19] R. W. Schoenlein and W. Z. Lin, *Appl. Phys. Lett.*, **51**(1987), 1442.