

中红外超短脉冲的产生及其研究的最新进展

崔大复 张 杰

(中国科学院物理研究所,北京 100080)

中红外超短(皮秒至飞秒量级)脉冲是研究固体、表面、等离子体和光化学等领域里各种瞬态过程的有力工具。着重介绍了常用的四种产生中红外超短脉冲的方法,即光学自由感应衰减、半导体开关、光学参量振荡以及差频产生,并比较了它们的优缺点,概述了这方面研究的最新进展及其应用。

关键词 中红外,超短脉冲,瞬态过程

Abstract

The mid-infrared ultrashort pulses have proved to be an extremely valuable tool for the investigations of ultrafast phenomena in the area of solid-state physics, surface physics, plasma physics and photochemistry. Four important methods for generating the mid-infrared ultrashort pulses, i. e., optical free induction decay, semiconductor switching, optical parametric oscillator and difference frequency generation, are briefly surveyed in this paper. The recent progress and some applications of mid-infrared ultrashort pulses are cited.

key words mid-infrared, ultrashort pulses, transient process

皮秒和飞秒光学超短脉冲的发展,为物理学、化学和生物学的实验研究开辟了新的领域^[1]。然而,大多数超短激光源都集中在紫外、可见和近红外光谱区。最近几年,人们对中红外超短激光脉冲研究的兴趣正日益增长^[2,3]。因为中红外超短脉冲是研究固体、表面、等离子体和光化学等的有力工具。其中最引人注目的物理问题包括分子内和分子间的动力学过程,如能量转移和解相现象^[4],窄能隙半导体或超晶格多量子阱子带间瞬态光跃迁和载流子的弛豫过程^[5]等。在这些应用中,除了要求用快的光脉冲以外,还希望光的波长能在很宽的范围内可调谐。

在紫外、可见和近红外波段,基本上都是用锁模技术来获得超短激光脉冲,但这种技术很难直接移植到中红外区。A. J. Alcock 等人曾尝试过 10μm 锁模 CO₂ 激光器,仅得到大约 70 ps 的激光脉冲。显然,为了产生更短的中红外脉冲,必须采用其他新的方法。到目前为止,用

于产生短于 30ps 的可调谐中红外的主要方法有:(1)光学自由感应衰减(optical free induction dacay,简称 OFID)技术,半导体开关技术,光学参量振荡(optical parametric oscillator,简称 OPO)和差频产生(difference frequency generation,简称 DFG)。此外还有受激拉曼散射和电磁声子散射等^[6]方法。由于篇幅所限,本文将着重介绍前四种产生中红外超短脉冲的方法及其研究的最新进展。

一、光学自由感应衰减技术

用光学自由感应衰减技术产生 10μm 超短脉冲装置主要由三部分组成:一台可以单模运转的高功率脉冲 CO₂ 激光器,快速截断激光脉冲后沿的等离子体光闸,以及作为光谱滤波器的热 CO₂ 气体共振吸收池。系统的核心部分是等离子体光闸,它决定着所产生的超短脉冲的宽度。

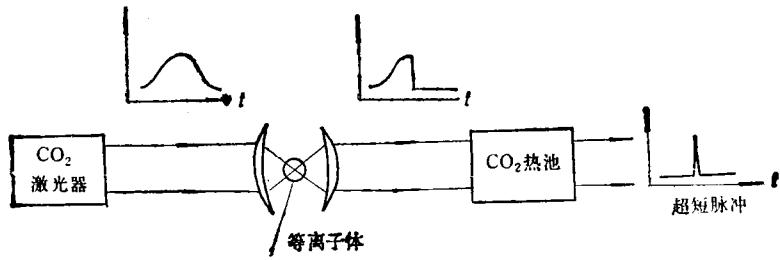


图 1 光学自由感应衰减法产生超短脉冲原理

图 1 示出了用 OFID 方法产生中红外超短脉冲的基本原理。当一束波长为 $10\mu\text{m}$ 左右、脉冲宽度为 100ns 的 CO_2 激光入射到一对透镜之间时, 该激光在焦点附近将空气击穿并迅速产生等离子体, 使透过光束突然截止, 将脉冲尾部截去。可见, 等离子体击穿过程起到了光闸的作用。在简单的模型中, 这个截尾脉冲可以用阶梯函数来描述。截尾光脉冲通过一个适当的光谱滤波器以后, 再滤掉较宽的脉冲前沿部分, 就可以得到一个窄的超短光学脉冲。可供选择的光谱滤波器有: 迈克尔逊干涉仪、法布里-珀罗标准具、光栅单色仪和共振吸收体。其中效果最好的是热 CO_2 气吸收体。用热 CO_2 气吸收池产生超短脉冲的过程, 可以视为光学自由感应衰减过程^[7]。当 CO_2 分子被光脉冲激发之后, 又快速地返回低能级, 同时发射一个进动脉冲。该脉冲的宽度由 CO_2 分子的进动时间决定, 并且可以通过改变热池的气压来调节。最终的脉冲宽度则受等离子体光闸本身开关速度的限制。根据线性频谱分析, 自由感应衰减脉冲可表示为

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-i\omega t) f(\omega) \cdot \exp[-N/2(1 - \omega T_2)] d\omega, \quad (1)$$

其中 N 是热池吸收度, T_2 是 CO_2 分子横向弛豫时间, $f(\omega)$ 是等离子体光闸的传输函数。假设经过等离子体光闸后的光脉冲用阶梯函数描述, 则 $f(\omega) = 1/i\omega$ 。由(1)式可见, 自由感应衰减脉冲的理论宽度 $\Delta\tau = T_2/N$ 。对于温度为 400°C 、气压为 250Torr 、长度为 5m 的 CO_2

热池, $T_2 = 200\text{ps}$, $N = 10$, 则有 $\Delta\tau = 20\text{ps}$ 。

1985 年, M. Sheik-bahaei 等^[8]采用 OFID 系统已获得 20ps 的 CO_2 激光脉冲, 其峰值功率为 2MW 。1992 年, A. W. Kalin^[9,10]等利用一台脉冲宽度为 100ns 、激光能量为 500mJ 的混合式 CO_2 激光器和 OFID 装置, 获得了脉冲 30ps 、能量达到 $80\mu\text{J}$ (相当峰值功率 2.7MW) 的 $10\mu\text{m}$ CO_2 激光, 并用于研究多晶非线性材料 ZnSe , CdTe 和 GaAs 的二次谐波产生。他们首次证实, 这些多晶材料可以作为非线性光学元件, 用于超短红外脉冲的相关测量, 具有使用方便的独特优点^[11]。

二、半导体开关技术

图 2 示出了利用半导体开关技术产生 $10\mu\text{m}$ 波段超短脉冲的光学装置原理。其中采用了两个元件作为反射开关, 以打开 $10\mu\text{m}$ 脉冲; 接着由一个透射开关截断红外脉冲。常规的 P 偏振 100ns 脉冲由一台混合式 CO_2 激光器提供。

该光束经过适当聚焦后, 以布儒斯特角入射到一对半导体 (如 CdTe 或 GaAs) 开关上。这时每个反射开关的反射率仅为 10^{-3} 左右。两个反射开关相结合, 其背底反射率则小于 10^{-6} 。一个光学抛光的半导体 Si 片作为透射开关, 用于截断红外脉冲的尾部。两个反射开关和一个透射开关均由另一台 s 偏振的可见光超短激光脉冲控制。选择 s 偏振的目的是为了确保每个反射开关上仅吸收一小部分 ($\sim 20\%$) 的可见光。这样就可以用同一束光控制全部三个半导

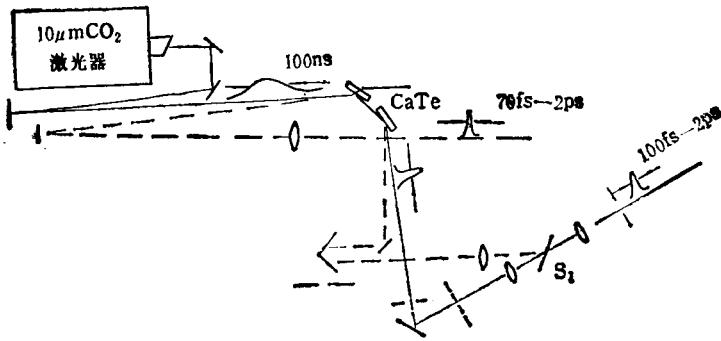


图2 利用半导体开关技术产生 $10\mu\text{m}$ 超短脉冲装置

体开关。当可见光束照射到半导体上时，将使受辐照区域的半导体表面附近产生高密度的电子-空穴等离子体。这些瞬时产生的过剩载流子，会强烈地吸收红外光，因而使半导体表面的反射率突然增大。例如，在布儒斯特角附近，半导体表面吸收的可见光能量密度为 1mJ/cm^2 时，就会使半导体对 $10\mu\text{m}$ 波段光束的瞬时反射率 R 增大到 90% 以上。因此，当脉冲宽度为 100ns 的 CO_2 激光束与超短可见光束以相同的束直径和近似相同的角度同步入射到两个反射开关时，经过反射的中红外脉冲则具有快速的前沿和大约几十 ps 的慢衰减的尾部。其前沿上升时间由可见光超短脉冲决定，而尾部衰减时间取决于所用半导体材料的自由载流子的寿命。接着让上述两束光又几乎同时到达 Si 片，使得 CO_2 激光脉冲的快速前沿部分刚好穿过 Si 片，而缓慢衰减的尾部却突然被反射掉，相当于透射开关迅速关闭。这样，透过 Si 片的 CO_2 激光就形成了超短红外脉冲。通过调节可见光相对红外光到达 Si 片的延迟时间，则可调节超短 CO_2 激光的脉冲宽度，它的最小宽度受可见光的脉冲宽度限制。

1985 年，P. B. Corkum^[2] 用脉冲宽度为 2ps 、输出波长为 616nm 的锁模染料激光作为半导体开关的控制光束，得到了脉冲宽度为 $2\text{--}30\text{ps}$ 的 $10\mu\text{m}$ 波段的超短脉冲，峰值功率约为 10^5W 。同时，他还用 CO_2 激光放大系统，使皮秒脉冲激光的能量密度达到了 1.5J/cm^2 。最近，C. Rolland 等用 70fs 的可见光脉冲控制半导体开关，产生了短于 130fs 的中红外脉冲，

波长范围在 $7.5\text{--}10.5\mu\text{m}$ 之间。脉冲峰值波长为 $9.3\mu\text{m}$ 时，谱宽 $\Delta\lambda = 1.1\mu\text{m}$ ，相当于 $\Delta\nu = 127\text{cm}^{-1}$ 。

实际上，光学半导体开关法是一项具有普遍意义的技术。如果将 CO_2 激光用其他红外光源（如 HBr ， CO ， NH_3 或 CF_4 激光器等）来代替，则可以产生不同波段的超短红外脉冲。原则上，其波长范围可覆盖从 $4\text{--}30\mu\text{m}$ 中红外波段。

三、红外参量振荡

参量振荡过程是利用非线性光学晶体来实现的。当频率为 ω_3 的高功率泵浦光通过非线性晶体时，可以产生两种可调谐的频率分别为 ω_1 的信号波和 ω_2 的闲频波。简单地说，参量振荡器把一个泵浦光子分裂成两个光子。三种频率的光子相互作用过程，必须满足能量守恒和动量守恒，即

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$$

和

$$\mathbf{K}_3 = \mathbf{K}_1 + \mathbf{K}_2,$$

其中 \mathbf{K}_1 ， \mathbf{K}_2 和 \mathbf{K}_3 分别为三种频率光所对应的波矢量。将上面两个公式结合在一起，得到相位匹配关系式：

$$\begin{aligned} \omega_3[n_3(\omega_3) - n_2(\omega_3 - \omega_1)] \\ = \omega_1[n_1(\omega_1) + n_2(\omega_3 - \omega_1)], \quad (2) \end{aligned}$$

其中 n_1 ， n_2 ， n_3 分别为三种频率所对应的折射率。显然，只有在各向异性的晶体中，才能使 (2) 式得到满足。在正常色散区采用负单轴晶

体时, $n_1(\omega_1)$ 必须是非寻常光的折射率, $n_1(\omega_1)$ 和 $n_2(\omega_2)$ 可以都是寻常光折射率(第一类相位匹配), 或一个是寻常光折射率, 而另一个是非寻常光折射率(第二类相位匹配)。(2)式表明, 如果 n_1 , n_2 或 n_3 可以随外部参量变化, 则能调谐参量振荡器的输出频率。一般地说, 可以通过转动晶体的角度或改变晶体的工作温度来实现。光学参量振荡器的结构方式很多。为了产生超短脉冲, 我们在此只考虑脉冲的工作方式。图 3 给出了参量振荡器的原理图。



图 3 光学参量振荡器原理

超短红外参量振荡器主要由脉冲宽度在皮秒至飞秒之间的泵浦光(通常为紫外、可见或近红外激光)和红外非线性晶体组成。在晶体的选择方面, 为了适合参量振荡的要求, 非线性晶体除了具有相位匹配所要求的双折射性能以外, 并且对泵浦波长和产生的红外波长都必须透明。通常有两类非线性晶体能满足折射率和透明方面的要求。在可见光和近红外光波段, 它们是 LiB_3O_5 (0.16— $2.6\mu\text{m}$), BaB_2O_4 (0.19— $2.6\mu\text{m}$), LiNbO_3 (0.4— $4.5\mu\text{m}$) 和 LiIO_3 (0.3— $5.5\mu\text{m}$) 等氧化物; 对中红外, 可选用 AgGaS_2 (0.5— $13\mu\text{m}$), AgGaSe_2 (0.8— $18\mu\text{m}$), AgAsS_2 (0.6— $13\mu\text{m}$) 和 GaSe (0.6— $18\mu\text{m}$) 等半导体晶体。

在现有的红外非线性晶体中, 由于 AgGaS_2 晶体具有质量高、非线性系数大和损伤阈值高等优点而成为很有实用价值的中红外非线性晶体, 得到广泛的应用。1984年, T. Elsaesser^[13] 等利用两块 AgGaS_2 晶体构成单通参量振荡器。两块非线性晶体的长度分别为 1.5cm 和 3cm , 彼此相距 35cm 。为了满足第一类相位匹配的要求, 晶体按 $\theta = 45^\circ$ 取向切割。泵浦光源由 Nd:YAG 激光器提供, 该激光器的输出波长为 $1.064\mu\text{m}$ 并具有 P 偏振态(e 光), 脉冲宽度

为 20ps , 谱线宽度为 2cm^{-1} , 单次脉冲能量为 10mJ 。泵浦脉冲进入第一块晶体($L = 1.5\text{cm}$)以后, 在信号频率和闲置频率处产生两个寻常光(e 光)波。它们具有很大的发散度和较宽的谱线宽度。在第二块晶体($L = 3\text{cm}$)中, 仅仅是信号波和闲频波中的与泵浦波相重叠的部分被放大。这时所产生的向前传播的信号波和闲频波具有小的发散度和窄的谱线宽度。利用硅或锗片可将信号脉冲和闲频脉冲与泵浦脉冲分开。同步转动两块 AgGaS_2 晶体的角度, 他们得到了波长调谐范围从 1.2 — $10\mu\text{m}$ 的超短脉冲。对 6 — $10\mu\text{m}$ 闲频中红外波, 谱线宽度大约为 10cm^{-1} 。当泵浦光强度为 3GW/cm^2 时, 对 $6.7\mu\text{m}$ 的闲频光, 其光子转换率为 2×10^{-3} , 即泵浦光子数为 5×10^{16} 时, 可以产生 10^{11} 个红外光子。用自相关方法测量表明, 闲频脉冲的宽度大约为 8ps 左右。

四、红外超短脉冲的差频产生

红外超短脉冲也可以利用光学差频方法获得。当频率为 ω_1 和 ω_3 的两束光在非线性晶体内部混频相互作用, 将会产生差频为 $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ 的光波。类似于参量振荡过程, 在满足适当的相位匹配条件下, 混频过程有最大的增益, 差频输出达到极大值。并且, 通过转动晶体的角度或改变晶体的工作温度, 也可以调谐差频波的输出频率。

1985年, T. Elsaesser^[14] 等人用锁模 Nd: YAG 激光器和行波染料激光器输出的皮秒脉冲为激光源, 在长度为 $L = 1.5\text{cm}$ 的非线性晶体 AgGaS_2 中混频, 以产生差频中红外超短脉冲。如果染料激光器的波长调谐范围从 $1.2\mu\text{m}$ 至 $1.46\mu\text{m}$, 则差频脉冲的波长能在 $3.9\mu\text{m}$ 至 $9.4\mu\text{m}$ 之间连续可调, 并且谱线宽度很窄, 在整个调谐范围内基本保持恒定, $\Delta\nu = 6.5\text{cm}^{-1}$ 。当泵浦波脉冲宽度为 21ps 时, 测得的差频波的脉冲宽度是 8ps 。

由于差频方法产生的超短红外脉冲具有调谐范围大, 谱线宽度不随输出波长变化而且又

很窄，再加上它的输出能量可比单通道参量振荡器高 10 至 100 倍，所以在实际中被广泛采用。例如，A.Seilmeier 等人^[15]利用在 AgGaS₂ 晶体中混频，得到了从 5μm 至 10μm 之间连续可调的差频波。其脉冲宽度为 2ps，脉冲能量为几个 μJ，谱线宽度大约为 10cm⁻¹。他们将该超短中红外脉冲作为光源，利用时间分辨红外光谱技术，直接观察了 GaAs-AlGaAs 量子阱结构中的子带间弛豫过程。在温度 $T = 300\text{K}$ 的条件下，对于能量间距为 150meV 的两个子带，测得的典型的子带间的弛豫时间为 10ps 左右。由这些实验结果，他们进一步研究了纵向光学声子散射在子带间弛豫过程中 的重要作用。1988 年，R. J. Bauerle 等人^[16]利用差频脉冲宽度为 8ps、波长范围在 4μm 至 9.5μm 之间可调的红外脉冲，研究了 n 型调制掺杂的 GaInAs-AlInAs 多量子阱结构中热载流子的子带间散射和冷却。采用皮秒泵浦-探测实验技术，监测量子阱中电子从基态至第二子带($n = 2$)跃迁的非线性吸收过程。他们估算出电子在第二子带的寿命上限是 3ps。此外，他们还研究了由于带间吸收产生的热电子-空穴对的弛豫。实验结果表明，纵向光学声子的散射在热载流子的冷却过程中起主导作用。

除了用超短中红外脉冲研究半导体多量子阱结构中载流子的超快弛豫过程之外，也有人用它来研究分子的瞬态振动光谱。例如，最近美国贝尔实验室的 A. G. Yodh 等人^[17]，报道了有关吸附在铜(111)表面上的 CO 分子的振动动态皮秒时间分辨吸收光谱的研究结果。他们将一台连续锁模 Nd:YAG 激光器输出（波长 1.06μm、脉冲宽度 90ps）的激光，通过倍频晶体 KTP，产生 0.53μm 辐射。用该倍频光泵浦染料激光器，可以得到脉冲宽度为 3ps、波长为 810 nm 至 860nm 的可调谐的近红外光。另一部分 1.06μm 基频波的脉冲宽度被压窄到 3.75ps 以后，再与染料激光在 AgGaS₂ 晶体中混频，产生波长从 3.4μm 至 7.0μm 超短中红外脉冲，其脉冲宽度为 2.16ps，谱线宽度为 6.6cm⁻¹，脉冲重复频率为 76MHz。在波长 $\lambda = 5\mu\text{m}$ 处，红外

辐射功率 $\sim 16.5\mu\text{W}$ 。他们用来产生中红外皮秒脉冲的激光器系统如图 4 所示。该装置提供了一个可调谐、高重复频率的皮秒时间分辨的探测脉冲。使用该红外脉冲，他们测量了在高真空系统中吸附在铜 (111) 表面上的单层 CO 分子的线性吸收谱。吸收峰值位于 4.82μm 附近，测得的 CO 分子振动谱线宽度为 11.3cm⁻¹。由于所使用的红外脉冲光源的线宽为 6.6cm⁻¹，他们推断，振动谱线的自然线宽是 9.2cm⁻¹。

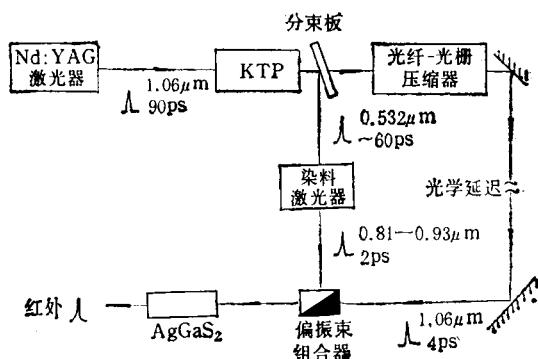


图 4 差频产生中红外超短脉冲激光系统

本文主要介绍了四种产生 ps 和 fs 中红外脉冲的方法，其中光学自由感应衰减方法得到的最短脉冲为 20ps。由于受到光源和等离子体击穿速度等限制，很难获得更短的光脉冲。半导体开关方法可以产生 100fs 左右的短脉冲，但装置比较复杂。由于以上两种方法都是用脉冲 CO₂ 激光器为基本光源，所以波长的可调谐范围仅在 8μm 至 11μm 之间。要想获得其他波长，必须更换激光器。光学参量振荡和差频产生的激光系统，与前两种方法相比，结构比较简单和紧凑，并均能获得较大的调谐范围。最近几年，随着红外非线性晶体生长质量的提高，光学参量振荡和差频产生中红外超短脉冲的方法更受到人们的重视。特别是采用差频方法，红外超短脉冲的谱线宽度不但较窄，而且几乎不随波长而改变，这更有利於实际应用。最新的研究成果表明，可调谐掺钛蓝宝石激光器系统已可产生 10fs 的超短脉冲。与适当的碰撞脉冲锁模 (CPM) 染料激光在红外非线性晶体中混频，则有可能得到短至只有几十 fs 的中红外

超短脉冲。这必将推动各种飞秒量级微观超快过程的研究。

- [1] W. Kaiser (Ed.), *Ultrashort Laser Pulse and Applications*, Springer-Verlag, New York, (1988).
- [2] J. D. Simon, *Rev. Sci. Instrum.*, **60**(1989), 3597.
- [3] R. W. Schoenlin et al., *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991), 801.
- [4] D. A. King et al., *Vibrations at surface 1985*, Elsevier, Amsterdam, (1986).
- [5] R. J. Bauerle et al., *Phys. Rev. B*, **38**(1988), 4307.
- [6] J. J. Wynne et al., in "Nonlinear Infrared Generation" (Y. R. Shea Ed.), Springer-Verlag, Berlin, (1977), 159.
- [7] L. Allen et al., *Optical Resonance and Two-level Atoms*, John Wiley & Sons, New York, (1975).
- [8] M. Sheik-bahaei et. al., *Appl. Opt.*, **24**(1985), 666.
- [9] A. W. Kalin et al., *Infrared Phys.*, **33**(1992), 73.
- [10] R. Kesselring et al., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-29**(1993), 994.
- [11] R. Kesselring et al., *Appl. Phys.*, **B55** (1992), 437.
- [12] P. B. Corkum, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-21** (1985), 216.
- [13] T. Elsaesser et al., *Appl. Phys. Lett.*, **44**(1984), 383.
- [14] T. Elsaesser et al., *Opt. Commun.*, **52**(1985), 355.
- [15] A. Seilmeier et al., *Phys. Rev. Lett.*, **59**(1987), 1345.
- [16] A. G. Yodh et al., *J. Opt. Soc. Am.*, **B8**(1991), 1663.
- [17] N. Sarukura et al., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-28**(1992), 2134.

非线性折射率测量的 Z 扫描方法¹⁾

费 浩 生

(吉林大学物理系, 长春 130023)

描述了利用会聚的单光束灵敏地测量各种非线性介质的非线性折射率和非线性吸收系数的方法。被测样品放置于会聚高斯光束的光轴上(z 轴), 样品在焦点附近沿 z 轴移动, 在远场处放置带有小孔的屏。通过小孔测量光束通过样品后的透过率, 根据透过率与样品位置的关系, 即可得到非线性介质的非线性折射率和非线性吸收系数, 并能确定非线性折射率的符号(自聚焦或自散焦)。给出了若干测量结果。

非线性折射率 n_2 的测量是研究介质非线性光学效应的重要手段, 在以往的非线性折射率的测量中已采用了多种方法, 例如非线性干涉法^[1]、简并四波混频^[2]、自行射^[3]、椭圆偏振法^[4]以及光束畸变^[5]的测量等。前四种方法是利用非线性干涉原理, 测量灵敏度高, 但不能测量非线性折射率的符号, 并且测量仪器也较复杂, 最后一种方法虽然较简单, 可以得到非线性折射率符号的信息, 但需要对光束在非线性介质中的传播过程进行详细的分析, 测量灵敏度不如前四种高。

下面将介绍一种测量非线性折射率的简单方法, 称作 Z 扫描方法^[6]。它是测量一聚光束通过一处于距焦点不同位置的非线性介质的透过率的变化, 不需复杂的计算, 即可以得到介

质的非线性折射率及其符号。对于样品具有饱和吸收、反饱和吸收和双光子吸收等非线性吸收情形, 利用此方法可以将非线性吸收系数和非线性折射率分离开, 也可以同时测量非线性折射率的实部和虚部, 而常用的四波混频方法是不可能做到的。下面我们将给出 Z 扫描方法的一般定性描述和简单理论分析, 并给出某些实际测量结果。

一、Z 扫描的一般描述

图 1(a) 是 Z 扫描的原理图。一高斯激光束经凸透镜会聚后传播至远场带有一小孔的屏,

1) 国家自然科学基金资助项目