

亚飞秒脉冲的产生与控制*

——饶毓泰基础光学一等奖介绍

吴健[†] 曾和平^{††}

(华东师范大学物理系精密光谱科学与技术国家重点实验室 上海 200062)

摘要 亚飞秒脉冲是研究和控制发生在阿秒时间尺度超快物理过程的有效工具. 基于分子调制过程, 文章作者提出并发展了一系列亚飞秒脉冲产生和操控的技术, 围绕频谱合成方案, 利用级联二阶非线性效应, 实现了多色圆锥辐射注入放大和二维多色阵列及其参量上转换放大; 同时, 还开展了基于飞秒振荡器及外腔增强技术的高重复频率高次谐波产生与输出耦合的相关研究.

关键词 亚飞秒脉冲, 分子调制受激拉曼散射, 高次谐波, 频谱合成

Sub-femtosecond pulse generation and its control

WU Jian[†] ZENG He-Ping^{††}

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, and Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract The generation of sub-femtosecond pulses will extend the horizon of ultrafast measurements to the time scale of electronic motions and allow us an exciting new view on nature. On the basis of molecular modulation we have developed a series of novel techniques for sub-fs pulse generation and control. Seeded amplification of colored conical emission and two-dimensional multicolored transverse arrays as well as simultaneously up-converted parametric amplification have been demonstrated using spectral synthesis to obtain sub-fs pulses. High harmonic generation and its output coupling from enhancement cavities with high repetition rate femtosecond pulse trains from oscillators have been investigated.

Keywords sub-femtosecond pulse, molecular modulation, high harmonic generation, spectral synthesis

研究和控制发生在极短时间内的超快过程, 例如化学反应、生物信息传递、电子跃迁等, 是超快物理研究的核心内容. 自从飞秒($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$)激光脉冲问世以来, 飞秒科学技术已经在物理学、生物学、化学控制反应、光通信等领域中得到了广泛应用. 为了研究更快的过程, 例如原子内电子的运动过程、不同能级之间的电子跃迁等, 我们必须要有更短的时间标尺和更快的探测手段. 亚飞秒以及阿秒科学将推动我们对原子分子内电子运动过程的认识, 实现更短时间尺度、更高时间分辨的研究.

目前, 有三种途径可以用于产生亚飞秒脉冲. 利用近红外光谱区的超短飞秒激光脉冲, 通过高次谐波过程^[1], 人们已经可以在 X 射线波段产生亚飞秒脉冲, 但其能量转换效率较低. 与此相比, 在可见和

近红外光谱区域, 我们可以利用分子调制高阶受激拉曼散射的方案产生亚飞秒脉冲序列^[2,3], 其能量转换效率可以接近于 100%. 另外, 我们还可以利用其他非线性过程产生极宽相干频谱, 通过频谱合成的方案^[4]获得亚飞秒脉冲输出.

分子调制过程与光电调制过程非常相似. 分子的运动主要包括转动和振动, 为简单起见, 我们以双原子分子的振动为例进行讨论. 在分子振动过程中,

* 国家杰出青年科学基金(批准号:1052416)、国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB806005)、华东师范大学优秀博士研究生培养基金资助项目

2008-01-07 收到

† Email: jwu@phy.ecnu.edu.cn

†† Email: hpzeng@phy.ecnu.edu.cn

分子的两个原子核相互远离对应于分子折射率的增加,而分子的两个原子核相互靠近则对应于分子折射率的减小.因此分子的振动过程对应于分子折射率的周期性变化,即分子的折射率以分子的振动频率被调制.如果介质中所有的分子都一起以同样的频率和相位振动,那么介质的宏观折射率将被周期性地调制.这就如同一个加了周期性调制电压的电光晶体,不同的是这里的调制频率为分子的振动频率.如图1所示,当载频为 ω_0 的光场通过这样的分子介质时,将在输出端产生一系列频率间隔 $\omega_m = \omega_{\text{vibration}}$ 的新的频率分量,即新的调制边带.显然,分子调制频率取决于分子的振动或转动频率,因此分子调制的频率可以很容易达到100THz的量级,这要比电光调制频率(一般小于GHz)大得多.所以,分子调制获得的新边带可以覆盖很宽的频谱范围.在实验上,利用分子调制技术,人们已经获得了从195nm到 $3\mu\text{m}$ 的约200个振动和转动拉曼边带,并且具有非常高的能量转换效率^[5].为了获得高阶边带并具有很高的能量转换效率,我们必须使系统内几乎所有分子都以相同的相位和频率一起振动,即要求系统具有很高的相干性.利用两束准连续的强纳秒激光脉冲,在近共振抽运的情况下,如图2(a)所示,通过绝热过程,可以在二能级系统中获得接近于0.5的系统相干.这意味着几乎所有的分子都以同样的频率和相位一起振动,即从宏观上类似于一个被周期性调制的电光介质,这就是所谓的分子调制.当抽运光场 E_0 和 E_{-1} 通过上述介质后(如图2(b)所示),我们可以获得一系列新的边带.

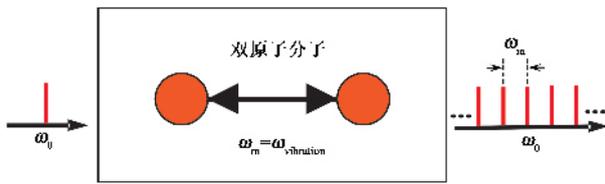


图1 分子调制示意图

表1 不同气体分子中不同跃迁能级之间能级间隔与脉冲间距的对应关系

气体分子	下能级 (振动量子数, 转动量子数)	上能级 (振动量子数, 转动量子数)	能级间隔	脉冲间距
H ₂	(V=0, J=0)	(V=1, J=0)	4160 cm ⁻¹	8 fs
H ₂	(V=0, J=1)	(V=0, J=3)	587 cm ⁻¹	57 fs
H ₂	(V=0, J=0)	(V=0, J=2)	354 cm ⁻¹	94 fs
D ₂	(V=0, J=0)	(V=1, J=0)	2994 cm ⁻¹	11 fs
D ₂	(V=0, J=0)	(V=0, J=2)	179 cm ⁻¹	186 fs

根据量子力学测不准原理 $\Delta\omega\Delta\tau = \text{常数}$,在时域上获得超短脉冲的前提条件是需要有在频域上有一个足够宽的频谱来支持.与产生飞秒脉冲类似,要获得亚飞秒脉冲,除了要有足以支持小于1fs的频谱外,另外一个非常重要的因素是色散补偿.系统相干相对于驱动光场的相位在这里扮演着非常重要的角色.

我们定义在同相态的情况下,系统相干和驱动光场之间有相同的相位,此时对应于双光子跃迁为下失谐;而在反相态的情况下,系统相干和驱动光场之间相位差 π ,即两者位相相反,对应于上失谐.如图2(c)所示,在反相态和同相态下,叠加后的电场分别为负啁啾(震荡频率随时间递减,即蓝光先于红光产生)和正啁啾(震荡频率随时间递增,即红光先于蓝光产生).所以,如图2(d)所示,在反相态的情况下,利用介质自身的正常色散特性,即红光的相速度大于蓝光,可以实现边带的自动压缩,直接在介质输出端获得亚飞秒脉冲输出.

然而,基于分子调制过程产生的一系列新的拉曼边带的频率间隔决定于所选定的双光子共振能级的能量差.从时域上看,根据傅里叶变换原理可以知道,利用这样的频谱所产生的脉冲序列,其脉冲间距受限于分子调制频率,即与分子调制频率成反比.因此,一旦选定了分子调制的两个能级,那么最终所能得到的亚飞秒脉冲序列的脉冲间距也就随之确定^[2],并且不可调节.如表1所示,不同的气体分子中不同的跃迁能级在时域上对应于不同的脉冲间距.例如, H₂分子中(V=0, J=0)到(V=1, J=0)的能级间隔为4160 cm⁻¹,在时域上相应的脉冲间距为8fs.然而,与标准的双光束抽运的二能级系统相比,利用两对载波频率分别为(ω_0, ω_{-1})和(ω'_0, ω'_{-1})的准连续激光,抽运一对共振频率 $\omega_{\text{ab}} = \omega_b - \omega_a$ 的双光子跃迁能级,我们可以获得脉冲间距可控的亚飞秒脉冲序列^[6,7].这样相当于在原有的频率边带(ω_0, ω_{-1})中插入了一对新的频率成分(ω'_0, ω'_{-1}),使最小的频率间隔由原来的 $\omega_{\text{min}} = \omega_m$ 变为 $\omega_{\text{min}} = \omega_{\text{shift}}$ ($\omega_{\text{shift}} < \omega_m$).由傅里叶变换简单原理我们可以知道,频域中最小的频率间隔的倒数决定了时域中脉冲序列的脉冲间距.因此,我们可以通过控制两对抽运光之间的相对频移 ω_{shift} 来控制频域中的最小频率间隔 ω_{min} ,以实现时域中对脉冲序列间距的有效控制.如图3所示,在不影响分子调制频率的情况下,通过改变抽运光场之间的相对频移量,能够有效地控制产生的亚飞秒脉冲序列的脉冲间距.另外,

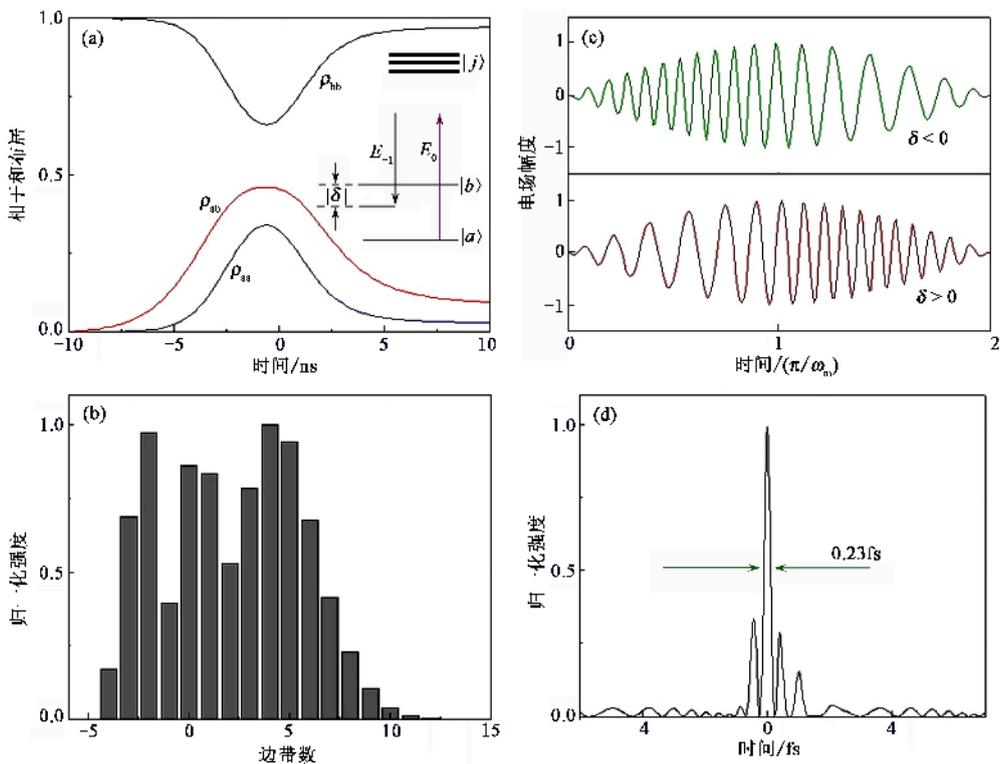


图 2 (a) a 和 b 能级之间能级布居数 ρ_{aa}, ρ_{bb} 和两能级之间的相干 ρ_{ab} (b) 分子调制过程中产生的边带; (c) 在忽略色散的情况下, 在介质输出端光场的时域分布 (d) 反相态下考虑介质的正常色散, 基于 H_2 分子第一振动双光子跃迁能级的数值模拟结果

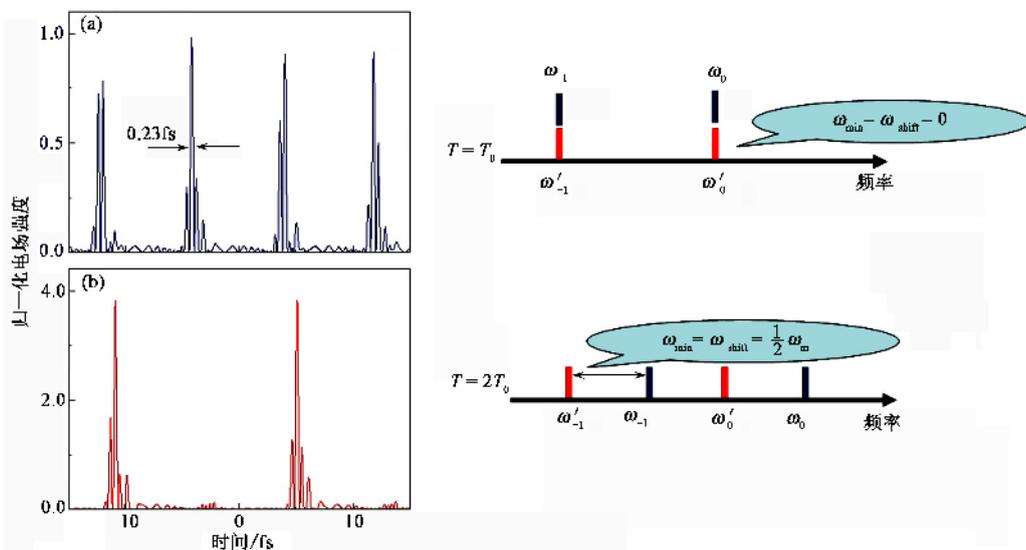


图 3 亚飞秒脉冲序列 (a) $\omega_{\text{shift}} = 0$ (b) $\omega_{\text{shift}} = 1/2\omega_m$. 基于固态 H_2 的第一振动双光子跃迁 (从 $V=0, J=0$ 到 $V=1, J=0$) 的模拟结果

在增大亚飞秒脉冲序列的脉冲间距的同时, 该方案能使更多的能量集中到更少的脉冲内, 可以显著地提高亚飞秒脉冲的单脉冲能量以及峰值功率。

利用多能级耦合的三能级系统^[8] (如图 4(a) 所示), 我们可以进一步获得大间距、高能量的亚飞秒

脉冲序列. 以 H_2 气体的基本拉曼振转能级 $a \rightarrow (V=0, J=0), b \rightarrow (V=0, J=2), c \rightarrow (V=1, J=0)$ 为例, 我们可以获得间距 ~ 379.9 fs 的大间距的亚飞秒脉冲序列. 由于三个能级之间跃迁强度的差异, 会导致不同强度的相干分布, 结果产生的频谱的振转边

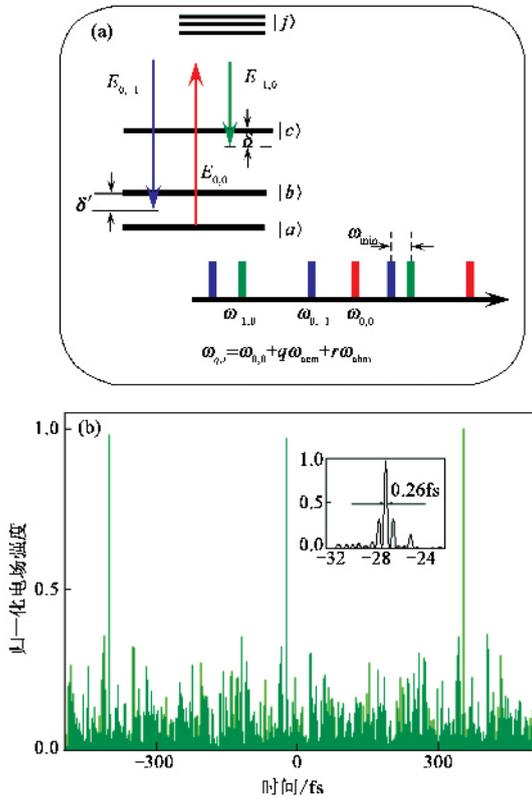


图 4 (a) 三能级系统产生亚飞秒脉冲能级示意图 (b) 亚飞秒脉冲序列, 三束抽运光强度均为 1.0 GW/cm^2 , $E_{0,-1}$ 相对于 $E_{-1,0}$ 和 $E_{0,0}$ 的延时为 2 ns

带强度分布不均匀, 从而影响脉冲序列的对比度, 同时降低了产生的亚飞秒脉冲的峰值功率. 为了解决这些问题, 我们可以通过控制三束抽运光之间的相对强度和延时, 对不同能级之间的相干进行调控, 从而最终对产生的亚飞秒脉冲序列进行优化控制^[8]. 如图 4 (b) 所示, 我们可以产生脉冲对比度极好的单脉冲宽度 $\sim 0.26 \text{ fs}$ 的亚飞秒脉冲序列输出.

在标准的基于二能级系统的分子调制过程中, 只有通过选择合适的双光子失谐量(下失谐), 使系统处于反相态的情况下, 才可能结合介质的正常色散特性在输出端产生亚飞秒脉冲序列^[2]. 然而, 跟标准的基于二能级系统的分子调制方案不同, 我们发现, 不论双光子失谐量的正负(上失谐或下失谐), 调制相干分子调制方案^[9-12]都能周期性地产生亚飞秒脉冲序列. 利用三束准连续纳秒激光对一个二能级系统进行抽运, 其中有两束抽运光的载波频率非常接近(频率差为 $\Delta\delta$), 这样在 a 和 b 两个能级之间将建立一个被调制了的系统相干^[9], 相对应的合成光场载波频率随时间的啁啾结构将被周期性地调制, 即每经过 $\tau = \pi / |\Delta\delta|$, 啁啾结构将反转. 如图 5 (a) 和 (b) 所示, 在前半个周期中合成光场随

时间为正啁啾(负啁啾), 但在后半周期中却为负啁啾(正啁啾). 如图 5 (c) 和 (d) 所示, 考虑介质本身的正常色散特性, 对应于负啁啾的部分将被压缩, 而正啁啾的部分将在传输过程中被进一步的展宽. 因此, 不论双光子失谐量的正负, 我们都将获得周期性的亚飞秒脉冲输出^[9-12]. 在实验研究上, 由于拉曼自聚焦、自散焦的影响, 标准的双光束抽运的分子调制方案在获得亚飞秒脉冲方面遇到了一定的困难. 然而, 利用调制相干分子调制过程中系统相干和驱动光场之间相位的周期性变化的特点, 该方案有望在实验上能克服拉曼自散焦以及自聚焦效应对分子调制过程的影响, 推动分子调制产生亚飞秒脉冲方案在实验研究方面的进展. 另外, 调制相干分子调制过程中, 调制结构可以从一个边带转移到其他边带, 因此可以用于调制转移, 有效地实现不同波长、不同强度的光场之间的调制结构的转移^[13], 克服传统电光调制器件在损伤阈值、透光范围等方面固有的限制, 拓展分子调制技术的应用.

频谱合成技术是获得超短脉冲的另一个有效途径. 1990 年, J. Hänsch^[4]就提出了利用相位相互锁定、频率为 $2f$ 和 $3f$ 的激光器, 在非线性晶体中, 通过倍频、和频、差频等非线性过程, 产生从 f 到 $6f$ 的相位相关的频率成分进行频谱合成, 以产生亚飞秒脉冲的方案. 频谱合成的核心是获得频谱覆盖范围极宽的相干辐射. 在实验上, 在二阶非线性介质中, 利用多色圆锥辐射注入放大, 我们可以产生从 797.6 到 500 nm 连续可调的高能量超短激光脉冲辐射^[14, 15]. 同时, 基于脉冲空间分裂和非共线的级联混频过程, 我们获得了二维多色阵列辐射, 并实现了其上转换放大^[16], 以用于基于频谱合成产生亚飞秒脉冲的研究.

通过高次谐波过程, 人们已经在实验上观察并测量到了亚飞秒脉冲^[1]. 根据半经典理论, 高次谐波的产生可以分为三个过程^[17], 首先是电子在外场作用下挣脱原子或分子的束缚成为自由电子, 然后是自由电子在外场中的加速运动, 并随着光场的反向而返回原来的母体, 最后在与母体的复合过程中辐射出高次谐波, 利用金属膜滤波片选取截止区的部分谐波成分, 即可获得亚飞秒脉冲输出. 可见, 高次谐波产生的物理基础是超短强激光场中原子分子电离解离行为^[18-24]. 相关研究将进一步帮助我们理解和控制高次谐波以及亚飞秒脉冲的产生. 然而, 为了产生高次谐波, 我们需要利用包括放大级在内的大型飞秒激光系统作为驱动源. 随着腔增强技术的

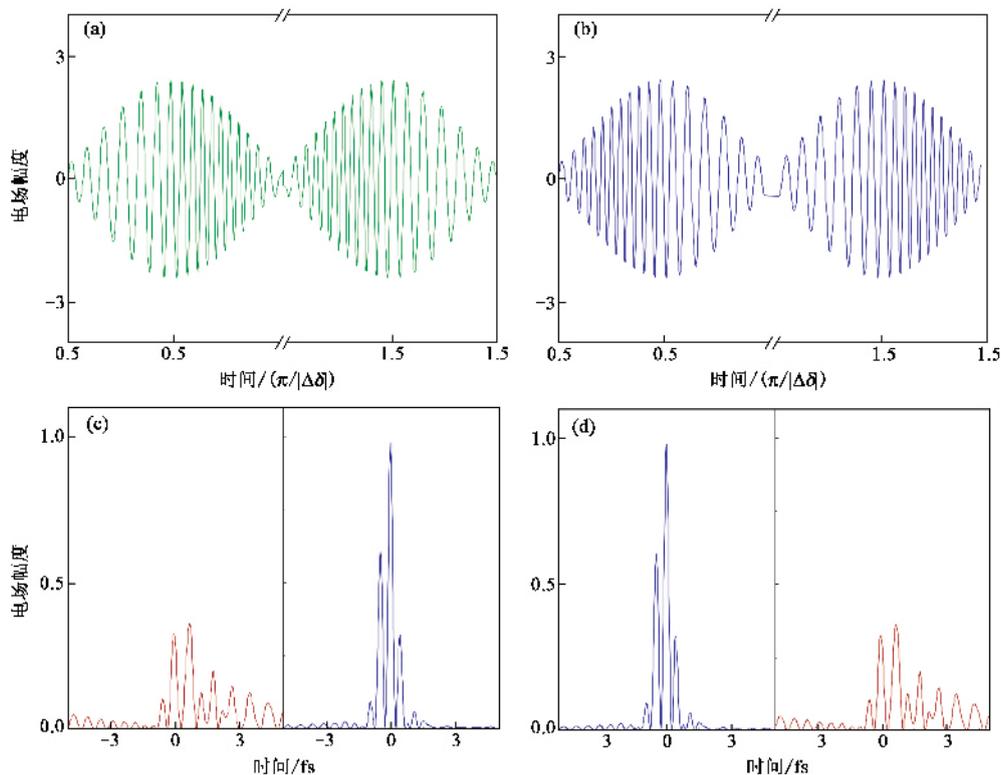


图5 在忽略色散情况下介质输出端光场的时域分布 (a) $\delta > 0$ (b) $\delta < 0$ (c)和(d)分别为对应的三束光抽运情况下基于调制相干周期性产生亚飞秒脉冲序列 ($\delta, \delta' = (20, 220) \times 2\pi$ MHz)

发展^[25, 26],人们已经可以利用飞秒振荡器,通过锁定外腔的腔长和色散,获得足以产生高次谐波的光场强度,可用于开展高重复频率的高次谐波以及亚飞秒脉冲产生的研究.然而,外腔的腔镜使得产生的谐波以及亚飞秒脉冲囚禁在腔内,如何将其耦合输出是我们必须要解决的一个问题.通过在腔内插入布儒斯特片,可以将产生的高次谐波输出.但这一方案存在一些不足,首先插入布儒斯特片会降低外腔的精细度,影响腔的放大效率;其次,由于布儒斯特片有一定的厚度,会引入一定的色散,限制了可以得到的最短脉冲宽度;再者,布儒斯特片位于焦点附近,在如此高的光强下,布儒斯特片本身会引入一些非线性效应,使得频谱扭曲;最后,由于菲涅尔反射效率很低,因此能够真正输出的高次谐波只是其中很小的一部分.我们发现,如图6所示,利用非共线双外腔结构,在其公共焦点附近产生的沿两束基频光场角平分线方向传输的高次谐波,在空间上与基频光场自动分离,从两个腔镜的中间直接输出高次谐波^[27].相比于在腔内插入布儒斯特片的方案,非共线高次谐波产生方案不会引入附加的色散、损耗以及非线性频谱扭曲等问题,而且具有很高的耦合效率.

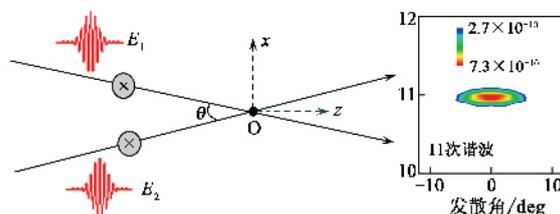


图6 基于振荡器的非共线高次谐波产生方案示意图

自从2002年亚飞秒脉冲的产生和测量结果不约而同地被 Science 和 Nature 评为当年的十大科技突破以来,有关亚飞秒脉冲产生和控制的研究在全世界范围内引起了人们极大的关注.不同的研究小组从不同的方面开展了大量的工作,提出并发展了一系列的新方案和技术手段,然而进一步产生和控制大能量、高强度的亚飞秒脉冲,还有待更多的更加深入的研究.

参 考 文 献

[1] Sola I, Mével E, Elouga L *et al.* Nature physics, 2006, 2 : 319
 [2] Harris S, Sokolov A. Phys. Rev. Lett., 1998, 81 : 2894
 [3] Shverdin M, Walker D, Yavuz D *et al.* Phys. Rev. Lett., 2005, 94 : 033904
 [4] Hänsch T. Opt. Comm., 1990, 80 : 71

- [5] Yavuz D , Walker D , Shverdin M *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2003 , 91 :233602
- [6] Wu J , Zeng H. Opt. Lett. ,2003 ,28 :1052
- [7] Wu J , Zeng H. Phys. Rev. A ,2003 ,68 :015802
- [8] Wu J , Zeng H. Phys. Rev. A ,2003 ,68 :063823
- [9] Wu J , Zeng H. Phys. Rev. A ,2005 ,71 :043808
- [10] Wu K , Wu J , Zeng H. J. Phys. B ,2003 ,36 :L349
- [11] Wu J , Zeng H. Appl. Phys. Lett. ,2003 ,83 :2127
- [12] Wu J , Zeng H. Europhys. Lett. ,2004 ,66 :661
- [13] Wu J , Zeng H. Phys. Rev. A ,2004 ,70 :053815
- [14] Zeng H , Wu J , Xu H *et al.* Phys. Rev. Lett. ,2004 ,92 :143903
- [15] Zeng H , Wu K , Xu H *et al.* Appl. Phys. Lett. ,2005 ,87 :061102
- [16] Zeng H , Wu J , Xu H *et al.* Phys. Rev. Lett. ,2006 ,96 :083902
- [17] Corkum P B. Phys. Rev. Lett. ,1993 ,71 :1994
- [18] Wu J , Zeng H , Guo C. Phys. Rev. Lett. ,2006 ,96 :243002
- [19] Wu J , Zeng H , Guo C. Phys. Rev. A ,2006 ,74 :031404 (R)
- [20] Wu J , Zeng H , Wang J *et al.* Phys. Rev. A ,2006 ,73 :051402(R)
- [21] Wu J , Zeng H , Guo C. Phys. Rev. A ,2006 ,74 :065403
- [22] Wu J , Zeng H , Guo C. Phys. Rev. A ,2007 ,75 :043402
- [23] Wu J , Zeng H , Guo C. J. Phys. B ,2006 ,39 :3849
- [24] Wu J , Zeng H , Guo C. J. Phys. B ,2007 ,40 :1095
- [25] Gohle C , Udem T , Herrmann M *et al.* Nature ,2005 ,436 :234
- [26] Jones R , Moll K , Thorpe M *et al.* Phys. Rev. Lett. ,2005 ,94 :193201
- [27] Wu J , Zeng H. Opt. Lett. ,2007 ,32 :3315

· 物理新闻和动态 ·

噪声会引起巨浪

常有水手报告说看到高达 30m 的海浪. 没有人知道为什么会形成如此凶猛的波浪. 如今美国和德国的物理学家通过将激光脉冲发射到光学晶体纤维上, 产生了与这种巨浪等价的粗光学波. 通过对光学系统进行计算机模拟, 研究人员认为, 粗光学波, 因而巨大的海浪, 是由噪声引起的.

光学晶体纤维是一种透明的绳索, 有数百个排列整齐的孔洞穿过其整个长度. 这种结构产生的一种折射指数对光波具有非线性效应, 会按照波的强度改变其频率.

许多频率为钟罩形分布的波可以组成一种脉冲波, 当这种脉冲波进入光学晶体纤维中时, 其频谱变宽. 粗波是脉冲波的一种. 但是其短暂而尖锐的波峰的形成需要非常宽的频谱, 而这种频谱是不能仅仅由这一非线性效应产生的.

美国的 Daniel Solli 和德国的 Claus Ropers 发现, 在波脉冲频谱的两边的噪声偶尔会产生合适的波长和强度, 使光学晶体纤维中的展宽过程大大加快, 导致光学粗波的产生. (有关文章见 Nature ,2007 ,450 :1054).

(树华 编译自 Physics World News ,14 Dec. 2007)

⁴He 超固体相变的比热证据

2004 年, E. Kim 等在一个固态氦的扭摆实验中发现, 当温度降到约 100mK 以下时, 扭摆的震荡周期突然减小. 这意味着部分固态氦与大块晶格的运动退耦合, 导致了转动惯量的突降. 目前, 学术界对上述现象的共识是, 发生了超固体 (supersolid) 相变. 3 年以来, 尽管在理论和实验两方面均有明显进展, 但有关相变存在的热力学证据一直缺乏. 最近, 来自美国宾夕法尼亚州立大学的 X. Lin 等, 在对固态氦的比热测量中, 观察到一个与相变温度相应的比热峰, 从而证实这是一个从正常固体相到超固体相的二级相变.

液态氦在 $T = 2.176\text{K}$ 发生超流相变, 它的比热在此表现为一个极其尖锐的“ λ 形”峰. 从已完成的几个固态⁴He 扭摆实验看, 由转动惯量的减少推算出来的所谓“超流分数”, 大约在 0.03% —20% 之间. 并且晶格缺陷越多, 超流分数越大. 迄今被研究最多的固态氦样品, 是由含 0.3p. p. m. ³He 的商品高纯⁴He 气体制备的. 如果³He 浓度更高, 固态⁴He 的晶格完善度可能变差, 超固体相变的起始温度反而可能升高.

从 1960 年代起, 有多个小组做过固态⁴He 的比热测量. 不幸, 由于实验上的困难(在 100mK 以下, 样品包的热容量与其中固态⁴He 的热容量相比, 可能高达 20 :1), 这些测量只能给出 T^3 的温度依赖关系(德拜模型). 在 Lin 等的实验中, 为了提高测量精度采取了以下措施 (1) 选取高纯⁴He 样品反复测量 (2) 样品包用热容量小、热导率高的高纯硅制作 (3) 采用“交流法”测量, 电加热器的供电频率不能太高, 以便维持样品包整体的热平衡; 同时, 供电频率也不能太低, 以便样品温度被调制. 最终, 对于 3 个高纯⁴He 样品(分别含 1p. p. m. , 0.3p. p. m. , 10p. p. m. 的³He)测得的比热峰均位于 $T \sim 75\text{mK}$ 附近.

(戴闻 编译自 Nature 2007 449 :025 和该期的 Editor 's Summary)