

飞秒激光离焦抽运熔融石英产生超连续白光的实验研究*

冯柳宾¹⁾²⁾ 鲁欣^{2)†} 刘晓龙²⁾ 葛绪雷¹⁾²⁾ 马景龙²⁾ 李玉同²⁾ 陈黎明²⁾ 董全力²⁾
王伟民²⁾ 滕浩²⁾ 王兆华²⁾ 盛政明²⁾³⁾ 魏志义²⁾ 贺端威¹⁾ 张杰²⁾³⁾

1) (四川大学物理科学与技术学院和原子与分子物理研究所, 成都 610064)

2) (北京凝聚态物理国家实验室, 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100190)

3) (上海交通大学物理系激光等离子体教育部重点实验室, 上海 200240)

(2011 年 12 月 26 日收到; 2012 年 2 月 21 日收到修改稿)

利用飞秒激光在熔融石英介质中传输产生能量达数毫焦、波长范围覆盖 400—900 nm 且光谱分布较为均匀的超连续白光, 实验过程中将熔融石英介质离焦放置以避免被击穿. 研究了入射激光能量以及介质离焦距离对超连续白光特性的影响. 结果表明采用高能量的入射激光脉冲离焦抽运介质的方法能够有效避免介质击穿损伤并提高超连续白光脉冲的能量输出.

关键词: 超连续, 飞秒激光, 熔融石英, 白光激光

PACS: 42.65.Jx, 42.65.Tg, 52.38.Hb

1 引言

超短激光脉冲在透明介质中产生超连续白光的现象已成为非线性光学的热点研究问题之一^[1]. 1970 年 Alfano 等人用皮秒脉冲光在玻璃中产生了超连续白光, 并用自相位调制理论 (SPM) 对该现象进行了解释^[2], 随后人们还提出了电离增强自相位调制, 受激拉曼散射, 自陡峭效应和四波混频等过程来解释超短激光在透明凝聚态和气体介质中产生的超连续白光现象^[1,3]. 而目前普遍认为超短脉冲激光在介质中产生超连续白光的主要机理是多光子电离产生的等离子体增强自相位调制^[4-6]. Brodeur 和 Chin 发现超连续的产生与固体能级的带隙有关, 只有当固体能级带隙大于 4.7 eV 时才会出现明显的超连续现象^[4]. 已往的实验还表明入射激光功率只有超过自聚焦阈值时才能够在介

质中产生超连续白光^[1,2]. 超连续辐射的光谱范围覆盖了从紫外^[1]到中红外^[2]波段, 具有广泛的应用价值, 例如用超连续白光的吸收和激发光谱研究生物、化学和物理上的超快过程^[1], 还可以用于超高分辨率受激发射损耗显微术 (STED) 的成像光源^[8], 天文计量的频率标准^[9], 以及激光雷达^[10]等.

为了获得高能量和光谱展宽均匀的超连续白光激光, Chin 等人提出增强入射激光光强在宽带隙的固态介质或高电离势的气体中产生多光丝传输的方案^[4,11]. Varela 等人基于此方案在氮气和氩气中产生毫焦级的超连续白光^[12], 同时 Zhavoronkov 也在六氟化硫气体中产生百微焦、光谱展宽均匀的超连续白光^[13]. 飞秒激光在固体介质中产生的超连续白光具有光谱分布广、光斑的对称性、均匀性好等优点^[1,14]. 但是由于固体介质的击穿损伤阈值较低^[15,16], 在以前的实验中通常只用几百纳

* 国家自然科学基金 (批准号: 10734130, 60978031, 10925421) 资助的课题.

† E-mail: luxin@iphy.ac.cn

焦到几个微焦的超短激光脉冲入射到石英等固体介质中观测超连续白光的产生^[1,4-7]. 这在一定程度上限制了在透明固体介质中白光激光脉冲能量的提高.

为了在固体介质中获得较高能量的超连续白光, 本文以熔融石英介质为例, 在提高入射激光能量的同时, 将适当厚度的介质放置在焦点前使激光不直接聚焦在介质内部, 避免了介质的光学击穿并得到高能量的超连续白光输出. 实验中我们测量了激光穿过石英玻璃后产生超连续白光的能量和光谱, 研究了在不同的透镜聚焦和不同的入射能量下, 激光穿过具有一定离焦量的石英后产生超连续白光中可见光成分(波长为 400—740 nm)的能量和光谱. 实验中我们成功地在石英固体介质中获得光斑均匀、强度高、展宽范围大并且光谱分布较为均匀的超连续白光.

2 实验装置

实验在中国科学院物理研究所极光二号 (XL-II)^[17] 掺钛蓝宝石 (Ti: sapphire) 超短超强激光装

置上进行. 实验布局如图 1(a), 激光的中心波长为 790 nm, 光谱宽度为 20 nm, 脉冲宽度为 60 fs (FWHM), 初始光束直径为 30 mm. 入射飞秒激光经不同焦距的透镜 (170 mm 和 300 mm) 聚焦后穿过厚度为 3 mm 的熔融石英来产生超连续白光. 我们通过精密平移台调节熔融石英中心和几何焦点的距离 (Z), 观察不同离焦量 Z 下产生的超连续的能量和光谱等物理特性. 超连续白光经过准直后用另一个透镜收集到光纤光谱仪中, 该光纤光谱仪 (Ocean Optics HR4000CG-UV-NIR) 的采集光谱范围为 200—1100 nm. 能量由具有微焦分辨的能量计 (响应光谱范围为 0.19—12 μm) 探测. 为了研究超连续光谱的可见光部分 (400—740 nm) 的能量和光谱, 我们在准直透镜后添加一个倾角 45° 的 800 nm 全反镜反射掉入射光波长附近的光谱成分. 该全反镜的反射率曲线图如图 1(b), 光谱反射范围为 740—950 nm 而且小于 740 nm 的光谱反射率都在 0.1 以下, 镜片厚度为 1 mm, 对于透过的可见光成分的能量和光谱的影响比较小. 并且实验中的能量和光谱的数据都是重复 10 发探测取其平均值, 减小实验中测量误差.

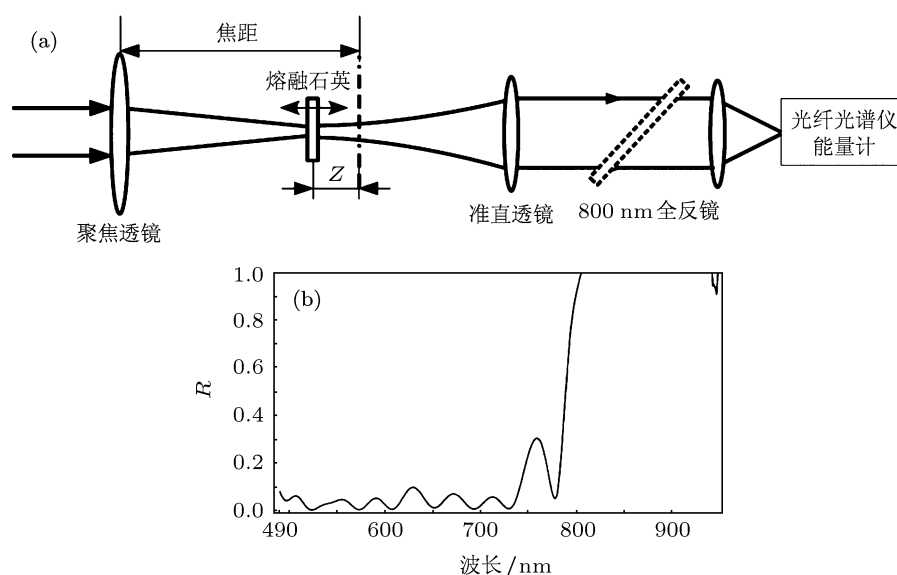


图 1 实验设备图 (a) 产生超连续的实验光路布置示意图; (b) 实验中所用的 800 nm 全反镜的反射率曲线图

3 实验结果与分析

实验中首先采用能量为 6.34 mJ 的激光 (峰值功率约为 10 GW) 经焦距为 300 mm 的透镜聚焦后穿过石英玻璃产生超连续白光. 激光的入射功率

远远大于 790 nm 激光在石英介质中的自聚焦阈值 (2.3 MW)^[18]. 由于激光脉冲的调制不稳定性, 这么高功率的飞秒激光将很容易在介质内产生等离子体多光丝^[19]. 然而在这样的激光照射下熔融石英的损伤阈值强度约为 $I_{\text{th}} = 3.2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ^[16].

如果将入射激光脉冲直接聚焦在熔融石英内部将会导致熔融石英永久损伤. 在实验中我们采取激光在聚焦之前就穿过熔融石英介质的方案以避免介质被击穿, 经过估算 6.34 mJ 的激光经 300 mm 焦距透镜聚焦后大约在距离焦点 6—7 mm 的位置其光强就会达到熔融石英的损伤阈值强度.

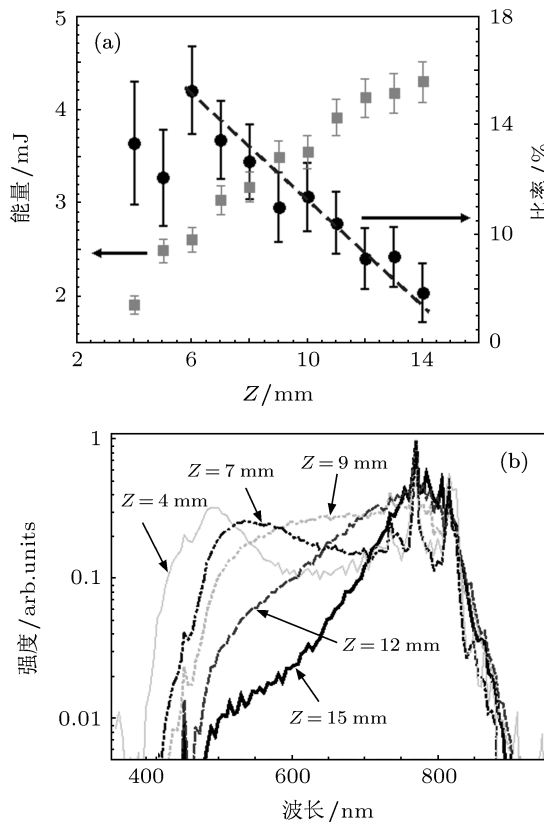


图2 (a) 能量为 6.34 mJ 的入射激光经 300 mm 焦距的透镜聚焦后离焦抽运石英玻璃输出的超连续白光能量(方块点)和可见光成分在输出能量中所占比率(圆点)随离焦量 Z 的变化图; (b) 不同离焦量 Z 下激光产生的超连续光谱

图 2 是 6.34 mJ 的激光经 300 mm 焦距的透镜聚焦后离焦抽运石英玻璃产生的超连续白光能量和光谱. 图 2(a) 中的方块点和圆点分别表示超连续白光输出总能量和可见光成分 (400—740 nm) 的能量在整个超连续谱中所占的比率与离焦量 Z 的关系. 图 2(b) 列出在不同离焦量 Z 值 ($Z = 15.0, 12.0, 9.0, 7.0$ 和 4.0 mm) 下产生的超连续白光光谱. 从图中 2(a) 可以发现随着介质靠近焦点, 更强的电离作用的产生消耗更多的激光能量, 导致输出的激光能量逐渐下降, 而可见光超连续成分在输出能量所占比率反而增加. 在图 2(b) 中也可以看出超连续白光的反 Stock 成分光强随着介质靠近焦点而逐渐增加, 而 Stock 成分的光强变化很小. 由于超短脉冲激光在固体介质中产生超连续白光的主要机理是多

光子电离产生的等离子体增强自相位调制 [5,6]:

$$\Delta\omega(t) = \frac{-d\Delta\phi}{dt} \sim \frac{\omega_0 z}{c} \frac{1}{2n_0\rho_c} \frac{\partial\rho(r,t)}{\partial t}.$$

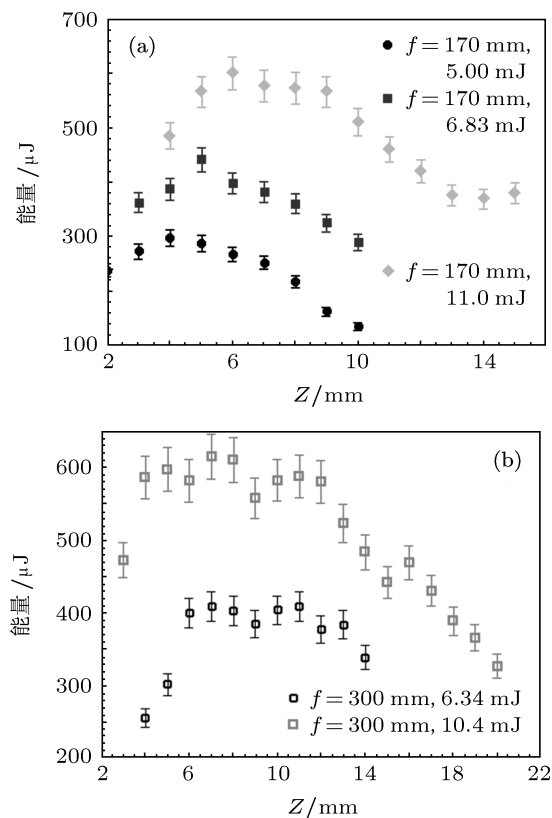


图3 在不同入射激光能量和不同的聚焦透镜下, 超连续可见光部分 (400—740 nm) 的能量与介质的离焦量的关系

超短脉冲激光成丝传输过程中等离子体将在一个脉冲宽度内突然增加 ($\partial\rho/\partial t > 0$), 急剧上升的电子密度将会增强光谱的短波长成分 (反 Stock 成分), 而在激光作用期间电子基本来不及复合, 因此电离作用对于长波长方向的光谱展宽几乎没有贡献, 所以形成不对称的光谱展宽 [20] (如图 2(b)). 而入射激光的光强随介质靠近焦点越强, 这将在介质内产生更高的等离子体密度而使得光谱向短波方向延伸 [21], 增强短波长成分的强度. 在图 2(b) 中可以看出随着离焦量 Z 值的变小, 超连续光谱的截止波长从 470 nm 延展到 400 nm, 而长波 Stock 成分的光谱变化很小. 这主要是由于激光在介质内传输时成丝引起激光强度钳制效应限制了光强随时间的变化的幅度, 使得激光在不同离焦量的石英玻璃内的自相位调制 $\Delta\omega(t) \sim \frac{-\omega_0 z n_2}{c} \frac{\partial I(r,t)}{\partial t}$ [4] 基本上相同. 然而可见光成分所占的比重并不会随着离焦量 Z 值变小一直增长, 在图 2(a) 中当 $Z = 6$ mm 时可见光成分的能量在整个超连续光谱中所占比

率达到最大值 $15.27 \pm 1.62\%$, 从图 2(b) 中也发现当 $Z = 9 \text{ mm}$ 时输出超连续白光的光谱强度分布较为均匀, 此时输出总能量为 3.5 mJ , 随后介质再进一步靠近焦点时可见光能量所占比率就突然下降. 结合前面激光致熔融石英损伤分析, 这时转换效率的下降可以说明石英玻璃已被击穿, 导致激光能量被大量吸收. 在实验中介质内部也发现已经出现激光灼烧的痕迹.

为了更加深入地研究激光在离焦的熔融石英介质中产生超连续白光的性质, 实验中研究了不同透镜焦距和不同入射激光能量下产生的超连续可见光部分 ($400\text{—}740 \text{ nm}$) 的能量和离焦量 Z 之间的关系. 实验中分别采用了焦距为 170 mm 和 300 mm 的两种透镜对激光进行聚焦. 图 3(a) 展示了聚焦透镜焦距为 170 mm 情况下入射能量为 5.0 mJ , 6.83 mJ 和 11.0 mJ 的飞秒激光产生的超连续可见光的能量与离焦量 Z 的关系. 而图 3(b) 为焦距 300 mm 的透镜聚焦下入射激光能量为 6.34 mJ 和 10.4 mJ 时输出的超连续可见光能量随介质离焦量的变化. 从图 3 中可以看出在大约 6.5 mJ 的入

射激光能量下, 采用 300 mm 焦距的情况比 170 mm 焦距在相同 Z 值下产生更高的超连续可见光能量. 这是由于越长的焦距在相同的离焦量 Z 值下对应的入射光强越强, 从而产生更高的等离子体密度^[21], 使得超连续白光的转换更加充分. 在图 3 中还可以看到, 超连续可见光的最高输出能量主要取决于入射激光的能量, 而与聚焦透镜的焦距关系不大 (6.5 mJ 入射能量附近对应的超连续可见光最高输出能量为 $400 \mu\text{J}$ 左右, 10.5 mJ 附近对应超连续可见光最高输出能量为 $600 \mu\text{J}$ 左右), 其主要物理机理是激光的成丝不稳定性使得相同的入射功率的激光在介质中传输时将产生数目相近的光丝^[3], 而光丝内的光强达到饱和后便不再增加, 这样即使在不同的初始聚焦条件下, 仍然会在介质中产生基本相同的超连续白光峰值能量^[11]. 虽然受到介质击穿损伤阈值的限制, 我们仍然可以获得高达 0.6 mJ 以上的超连续可见光能量的输出.

除能量参数以外, 超连续白光的光谱范围宽和光谱强度分布也是衡量其光谱质量的参考依据. 图 4 比较了能量约 6.5 mJ 的激光在不同透镜

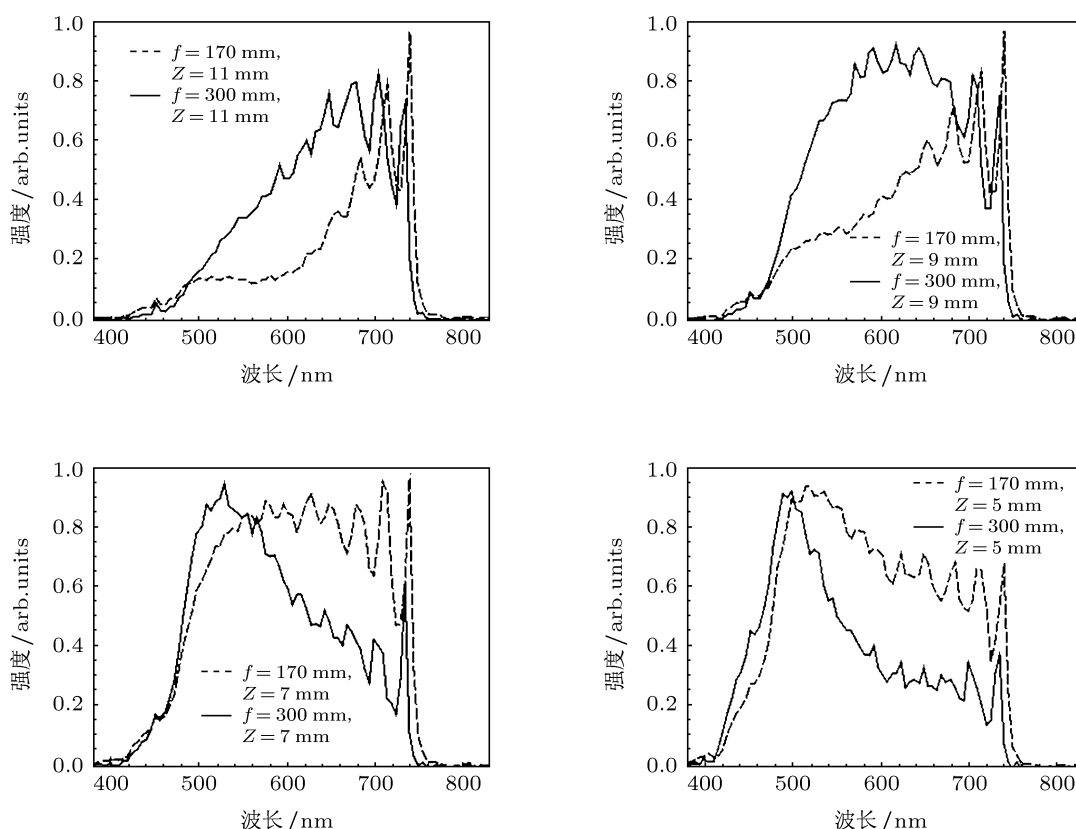


图 4 能量约 6.5 mJ 的激光在不同透镜焦距 (170 mm 和 300 mm 焦距) 的聚焦条件下和不同介质离焦量下产生的超连续可见光光谱 ($400\text{—}740 \text{ nm}$)

焦距 (170 mm 和 300 mm) 下产生的超连续辐射中可见光成分的光谱和离焦量 Z (11.0 mm, 9.0 mm, 7.0 mm 和 5.0 mm) 的关系. 从图中可以看出激光穿过离焦量分别为 $Z = 7$ mm ($f = 170$ mm) 和 $Z = 9$ mm ($f = 300$ mm) 的介质时产生的可见光超连续的光谱分布更加均匀, 其主要原因是由于当介质更加靠近焦点时, 产生等离子体密度的增强导致可见光光谱的短波长部分能量增长更快. 同时由于相同的离焦量 Z 值下, 更长聚焦的透镜在介质入口处会形成更小的光斑和更高的光强, 因此频谱蓝移发展得更为迅速^[22], 使得产生的超连续可见光光谱更早达到较为均匀的分布.

4 结 论

实验上研究了入射能量为 5—11 mJ 的飞秒激光脉冲经过透镜聚焦后穿过石英玻璃产生超连续辐射的性质, 为了避免介质击穿而采用了介质离焦激发的方案. 实验发现通过对介质离焦量的调节可以产生能量达到数毫焦并且光谱分布较为均匀的超连续白光, 同时对不同入射能量和不同焦距的透镜聚焦下产生的可见光白光的能量和光谱进行了观测. 本文的实验结果表明利用飞秒激光离焦抽运熔融石英介质能够有效提高超连续白光激光输出能量, 产生光谱范围较宽和分布均匀的超连续白光.

-
- [1] Alfano R R 2006 *The Supercontinuum Laser Source: Fundamentals with Updated References* (2nd Ed.) (New York: Springer) p473
 - [2] Alfano R R, Shapiro S L 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24** 584
 - [3] Couairon A, Mysyrowicz A 2007 *Phys. Reports* **441** 47
 - [4] Brodeur A, Chin S L 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4406
 - [5] Fang X J, Kobayashi T 2003 *Appl. Phys. B* **77** 167
 - [6] Dharmadhikari A K, Rajgara F A, Mathur D 2005 *App. Phys. B* **80** 61
 - [7] Ashihara S, Kawahara Y 2009 *Opt. Lett.* **34** 3839
 - [8] Bückers J, Wildanger D, Vicidomini G, Kastrup L, Hell S W 2011 *Opt. Express* **19** 3130
 - [9] Stark S P, Steinmetz T, Probst R A, Hundertmark H, Wilken T, Hänsch T W, Udem Th, Russell P St J, Holzwarth T 2011 *Opt. Express* **19** 15690
 - [10] Kasparian J, Rodriguez M, Méjean G, Yu J, Salmon E, Wille H, Bourayou R, Frey S, André Y B, Mysyrowicz A, Sauerbrey R, Wolf J-P, Wöste L 2003 *Science* **301** 61
 - [11] Chin S L, Petit S, Borne F, Miyazaki K 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** 126
 - [12] Varela O, Zaïr A, Román J S, Alonso B, Sola I J, Prieto C, Roso L 2009 *Opt. Express* **17** 3630
 - [13] Zhavoronkov N 2011 *Opt. Lett.* **36** 529
 - [14] Bradler M, Baum P, Riedle E 2009 *Appl. Phys. B* **97** 561
 - [15] Lenzner M, Kruger J, Sartania S, Cheng Z, Spielmann Ch, Mourou G, Kautek W, Krausz F 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4076
 - [16] Schaffer C B, Brodeur A, Mazur E 2001 *Meas. Sci. Technol.* **12** 1784
 - [17] Zhang J, Li Y T, Sheng Z M, Wei Z Y, Dong Q L, Lu X 2005 *Appl. Phys. B* **80** 957
 - [18] Tzortzakis S, Sudrie L, Franco M, Prade B, Mysyrowicz A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 21
 - [19] Tzortzakis S, Bergé L, Couairon A, Franco M, Prade B, Mysyrowicz A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5470
 - [20] Liu X L, Lu X, Liu X, Feng L B, Ma J L, Li Y T, Chen L M, Dong Q L, Wang W M, Wang Z H, Wei Z Y, Sheng Z M, Zhang J 2011 *Opt. Lett.* **36** 3900
 - [21] Théberge F, Liu W W, Simard P T, Becker A, Chin S L 2006 *Phys. Rev. E* **74** 036406
 - [22] Zhang L P, Li H N, Wu H, Li X, Ding L E 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 904 (in Chinese) [张丽平, 李海宁, 吴洪, 李贤, 丁良恩 2008 物理学报 **57** 904]

Off-focus generation of strong super-continuum emission in fused silica using high power femtosecond laser pulses*

Feng Liu-Bin¹⁾²⁾ Lu Xin^{2)†} Liu Xiao-Long²⁾ Ge Xu-Lei¹⁾²⁾ Ma Jing-Long²⁾
Li Yu-Tong²⁾ Chen Li-Ming²⁾ Dong Quan-Li²⁾ Wang Wei-Min²⁾
Teng Hao²⁾ Wang Zhao-Hua²⁾ Sheng Zheng-Ming²⁾³⁾ Wei Zhi-Yi²⁾
He Duan-Wei¹⁾ Zhang Jie²⁾³⁾

1) (*Department of Physics and Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610064, China*)

2) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*Key Laboratory for Laser Plasmas of the Ministry of Education of China and Department of Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

(Received 26 December 2011; revised manuscript received 21 February 2012)

Abstract

We report on the generation of millijoules supercontinuum, which covers waveband from ~ 400 nm to ~ 900 nm wavelength, by intense femtosecond laser pulse propagating in 3 mm thick fused silica. The fused silica is placed in front of the geometric focus of incident laser pulse to prevent the breakdown. The dependences of supercontinuum spectrum on incident pulse energy and off-focus distance of medium are investigated in detail. Our work demonstrates that strong supercontinuum can be generated using off-focus pump of solid transparent medium with energetic incident pulses.

Keywords: supercontinuum, femtosecond laser pulses, fused silica, white light continuum

PACS: 42.65.Jx, 42.65.Tg, 52.38.Hb

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10734130, 60978031, 10925421).

† E-mail: luxin@iphy.ac.cn