

文章编号: 1001-4322(2002)03-0365-06

# 飞秒非线性光学的最新进展 ——几个周期超短超强激光脉冲的非线性光学\*

邓冬梅, 郭 弘,

(华南师范大学 传输光学实验室, 广东 广州 510631)

**摘 要:** 介绍了飞秒非线性光脉冲研究的最新进展。超快技术的发展已经能够产生仅含几个振荡周期的超短脉冲, 其强度梯度使电子可以存在于比库仑束缚场高许多倍的外场产生的原子束缚态, 并产生了同光频相差不大的电离率, 从而导致了非线性光学的一些新的现象。

**关键词:** 超短光脉冲; 啁啾脉冲放大; 非线性响应; 高次谐波

**中图分类号:** TN 78; O 437

**文献标识码:** A

超短脉冲的技术已日臻成熟, 其应用范围从测试超高速半导体装置到精密材料处理, 以及从诱发及追踪化学反应到尖端的神外科手术应用等等。超短脉冲的出现使得人类以从未有过的时间尺度在微观世界中观察超快驰豫过程, 以及空前的强度能级研究光与物质的相互作用。本文主要介绍几周期强激光脉冲的产生和飞秒激光与原子相互作用的基本理论及实验原理上, 重点介绍高次谐波辐射和单次亚飞秒 XUV 以及 X-射线脉冲的产生。

## 1 基本理论

Brabec T<sup>[1]</sup> 等人总结了 30 多年来超短激光脉冲物理的进展, 提出了产生几个周期强光脉冲。这些脉冲在强场物理中有许多重要影响, 包含可产生高达 keV 光电子能的相干谐波辐射。最近, 改善的超快光学技术已产生仅含几个电磁场振荡周期的光学波包。此波包沿着传输方向的空间延伸被限制为辐射波长(0.5~1.0 μm 可见光和近红外光谱区)的几倍。这些脉冲在受衍射限制的光束中传输并聚焦到直径可与其波长相比拟的光斑, 因此在抛物透镜的焦点处辐射瞬时被限制成几个 μm<sup>3</sup> 的光子弹, 如图 1 所示。由于时空约束, 1 μJ 的脉冲能量可引起的峰值强度超过了 10<sup>15</sup> W/cm<sup>2</sup>, 电场的幅值可达 10<sup>9</sup> V/cm, 超过了原子外层电子受到的静止库仑场的幅值, 因此激光场足以抑制原子的束缚库仑势而引起光致电离(OFI)。

当电子摆脱原子核吸引而被电离时, 瞬时地加强了原子的非线性极化, 一旦原子被电离, 介质极化强度将随场呈线性变化, 从而结束了光和非线性相互作用(除了残余的部分离子极化引起的非线性)。新的非线性的出现必须经过增加光强, 进一步电离或加速自由电子达到接近光速的更高能态, 但是, 目前的技术水平还无法达到这两种情况。在第一级弱束缚电子被电离之前不久, OFI 的电离率达到最大值, 非线性原子极化终止。此能级在很大程度上与时间演化有关。含多个振荡周期的激光脉冲, 它电离处于原子基态的几乎所有外层电子, 当周期是几个 fs 时, 几个周期的高强度激光场被迅速接通。因此, 当高场强及 OFI 电离率与激光场的振荡频率近似相等时, 第一级电子电离发生; 从而在电子电离之后的第一级振荡周期内, 这些电子得到了从未达

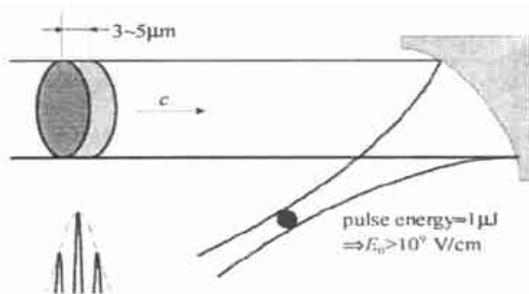


Fig. 1 The few-cycle ultrashort light pulses produce a "light bullet" through a parabolic mirror

图 1 几周期超短脉冲通过抛物镜产生“光子弹”

\* 收稿日期: 2001-10-29; 修订日期: 2001-11-19

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(69789801); 广东省自然科学基金团队项目(20003061); 国家 863 计划项目; 霍英东基金; 国家教育部骨干教师资助。

作者简介: 邓冬梅(1976-), 女, 硕士(2000 级)。

郭 弘(1969-), 男, 博士后, 教授, 博士生导师。广东省跨世纪人才工程省级学科带头人, 广东省十大“优秀青年科学家”, 第九届中华全国青年联合会委员。获得国家教育部科技进步三等奖等奖项。已在国内外核心学术期刊上发表学述论文近 60 篇。

到过的高动能,且该周期  $T_0$  内大部分原子被电离。几周期的圆偏振强场能够注射一股上升时间与  $T_0$  差不多的超强高能电子流进入一束等离子体,为发展电子泵浦内层 X-射线激光的能量达到 keV 开辟了道路。

脉冲前沿的高时间梯度使原子存在的强度数量级达  $10^{16} \text{W/cm}^2$ ,其原子偶极矩的振荡光谱频率比几周期的线偏振驱动激光场的频率高几千倍,产生能量为 0.5keV (空间)的干涉谐波辐射<sup>[2]</sup>。在传输过程的时间  $T_0$  内,OFI的极高峰值大大地调制几周期驱动脉冲,由此产生的非绝热自调制使相位匹配的高次谐波发射具有 keV 的光子能<sup>[3]</sup>。几周期驱动谐波 X-射线辐射可瞬时被限制到单次亚飞秒周期的脉冲中,这使 X-射线到达了从未有的峰值强度及物理上从未有过的时间分辨率。在时间上将原子系统辐射约束在几个光学周期,使得可见光和近红外辐射所感应的原子-场相互作用第一次能够发生在强场情况,而无须多光子情况的预电离。这暗示非线性原子的极化强度  $P_{nl}$ 可以解析地表示成驱动电场  $E(t')(t'-t)$ 的函数,大大简化了强辐射与展宽的原子介质相互作用的理论分析。更重要的是,  $P_{nl}$ 显含  $E[E(t) = E_a(t) \cos(\omega t + \phi)]$ 表明原子偶极矩的演化由电场决定,因此它不仅与强度包络  $E_a^2(t)$ 有关,而且与几个周期的激光脉冲的载波相位  $\phi$ 关。

## 2 超短激光脉冲的产生及其发展

锁模激光器的发明引起了超快光学的发展。锁模激光器导致谐振腔中形成了环流短光脉冲,当该脉冲撞击反射镜时,它的小部分能量被耦合到谐振腔外,从而输出一连串的超短脉冲。目前的技术水平可以通过锁定模的数量而使激光脉冲具有从未有的特性。第一台锁模激光器用固态材料作为增益介质,产生的脉宽小于 100ps。而啁啾脉冲放大(CPA)克服了以前仅用固态增益介质放大所引起的许多不足,其原理如 2 图,低能超短脉冲在通过放大器之前被拉伸,通过放大器之后被压缩,从而使放大器内的脉冲的峰值功率不会太高。到 20 世纪 90 年代,以衍射光栅为基本元件的脉冲压缩器和伸展机实现了 CPA,产生了脉宽为 100fs 峰值功率为几个 TW 的脉冲。最近的相关研究已产生了脉宽低于 20fs 峰值功率为几百 GW<sup>[2~4]</sup>的脉冲。

通过展开群延迟来表示衍射,群延迟(等于光学系统的相位延迟  $\phi$ 对频率的一阶导数)在中心频率  $\omega$  处泰勒展开为

$$T_g(\omega) = \phi'(\omega) = \phi(\omega) + \phi(\omega)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\phi''(\omega)(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\phi'''(\omega)(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (1)$$

其中:  $\phi'(\omega)$ 表示脉冲峰值横向通过色散介质所用的时间,高阶项描述了随相位变化的群延迟所导致的色散效应;  $\phi(\omega)$ 是最低阶群延迟色散或第二阶相位色散,通常称之为群延迟色散(Group delay dispersion, GDD),用  $D$  表示;  $\phi''(\omega)$ 、 $D_3$  和  $\phi'''(\omega)$ 、 $D_4$  分别被称为第三、四阶色散。

最近,证明了视波长而定的入射辐射的穿透深度是由调制的多层绝缘镜所致,这暗示了相应的群延迟与脉冲频率的关系(如图 3),此关系在一定范围内能够使所需的 GDD 的数值同多层绝缘镜的高阶色散的数值一样,这些多层绝缘镜被称为啁啾多层镜。图 4 描述了 10fs 内 Ti:Sapphire 系统第二和更高阶色散的几个啁啾镜的 GDD 与波长的关系曲线。采用 GDD 宽频带啁啾镜的目的是:在低于 10fs 的 Ti:Sapphire 系统中引入 GDD 的数值与高阶色散的数值一样。图 4(a)描述  $D = -40\text{fs}^2$  的宽频带啁啾镜,虚线表示标准的 GDD 曲线;图 4(b)描述波长范围是 580~930nm,通过熔融硅把色散补偿到第四阶的宽频带啁啾镜;虚线表示传输长度为 1mm 时熔融硅所引起的色散,其中  $D = -36\text{fs}^2, D_3 = -27\text{fs}^3, D_4 = -11\text{fs}^4, \lambda_0 = 800\text{nm}$ ;图 4(c)描述了波长范围为 560~1

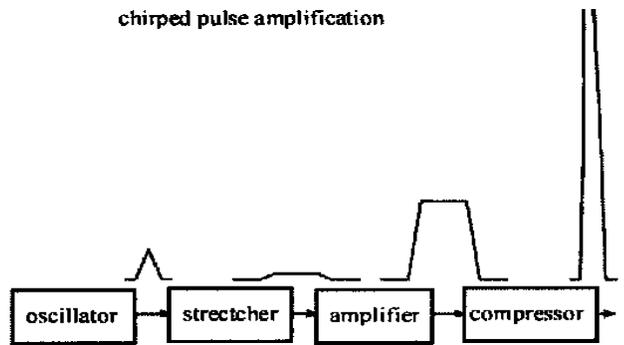


Fig 2 Principle of chirped pulse amplification  
图 2 啁啾脉冲放大的原理图

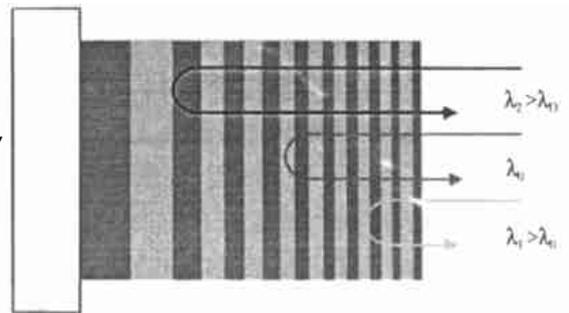


Fig 3 Schematic illustration of the origin of dispersion in a chirped multilayer mirror  
图 3 啁啾多层镜的负散起始示意图

1

000nm, 通过熔融硅把色散补偿到第四阶的宽频带啁啾镜, 虚线表示用最小二乘法处理数据所作的图, 其中  $D_1 = -53\text{fs}^2, D_3 = 9\text{fs}^3, D_4 = 400\text{fs}^4, \lambda_0 = 800\text{nm}$ , 表示从白光干涉仪中得到的测量数据(波长范围是 600~ 1000nm)。这些结果表明了 GDD 宽频带啁啾镜能够以从未有的精度在从未有的带宽内控制色散。

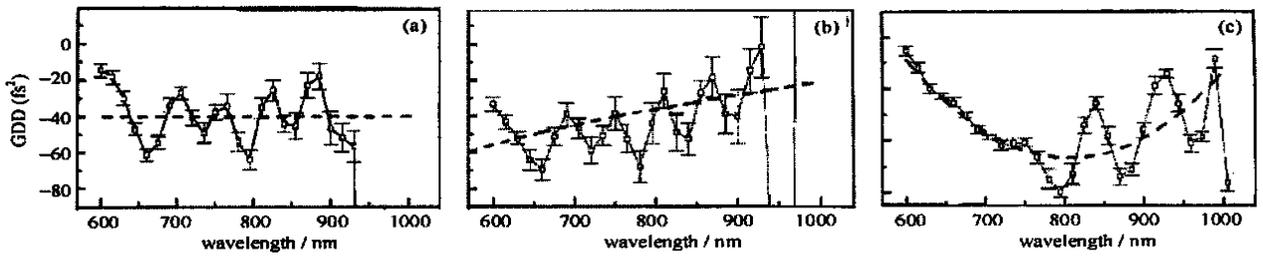


Fig 4 Curves of the Group delay dispersion (GDD) vs wavelength of ultrabroadband chirped mirrors

图 4 几个宽频带啁啾镜 GDD 与波长的关系曲线

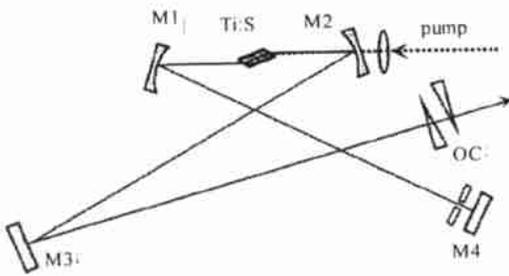


Fig 5 Schematic diagram of mirror-dispersioncontrolled

图 5 控制色散镜

光脉冲压缩是几个周期强激光脉冲产生的核心思想, 且以光学 Kerr 效应感应的自相位调制(SPM)和负 GDD 之间的相互作用为基础。目前, 在控制色散镜(MDC)Kerr 锁模(KLM)Ti:Sapphire 激光器和空纤维啁啾镜压缩器中已经最有效的实现了。实验装置简图如图 5 所示, 在得到小于 10fs 的稳态脉冲之前, 在 SPM 的锁模(KLM)Ti:Sapphire 激光器和负 GDD 的啁啾镜 M1 到 M4 之间交替对脉冲作用几千次, 脉冲通过 Ti:Sapphire 激光器时被啁啾且光谱被适度加宽, 在宽频带啁啾谐振腔中被转换。如果脉冲压缩在激光器外就已实现时, SPM 和 GDD 通常只以图 6 所示的顺序起一次作用, 因此在 Kerr 介质中的脉冲加宽比内腔中形成的单次脉冲加宽强得多。KLM/MDC Ti:Sapphire 振荡器通常产生的脉宽低于 10fs 典型能级为 nJ 且产生脉冲的重复率是几 MHz。图 5 的装置能够产生脉宽低于 7fs、峰值功率达 1MW<sup>[5]</sup>, 且如果用噪音泵浦二极管固态激光器泵浦产生脉宽低于 50fs 的脉冲装置中, 图 5 的装置显示了从未有的噪音特性; 如果除啁啾镜以外, 再插入一对低色散棱镜作为调节 GDD 的源, 利用激光腔 KLM/MDC 输出耦合的特殊设计, 就可得到了脉宽小于 6fs 的脉冲。目前的啁啾镜技术水平可从压缩器中得到脉宽小于 6fs 的脉冲, 此脉冲在空气中降低能级而聚焦及随时间加宽如此缓慢以致由非线性折射率引起该脉冲均匀地加宽百分之三十。后来通过几个宽频带啁啾镜的反射来补偿 GDD、空气第三阶色散和 SPM 的感应啁啾且导致了干涉自相关, 如 7 图中实线描述的, 点线表示不考虑光谱的相位调制而是对测量光谱进行反傅立叶变换, 目前最短的电磁脉冲是在脉冲强度包络的半高全宽处有 1.5 个光学振荡周期。

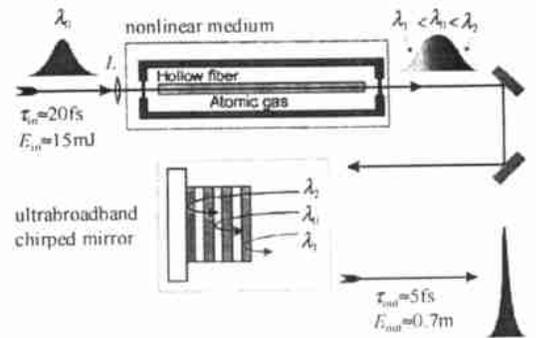


Fig 6 Schematic experimental setup of a hollow-fiber chirped-mirror high-energy pulse compressor

图 6 空纤维啁啾镜高能脉冲压缩器的实验装置示意图

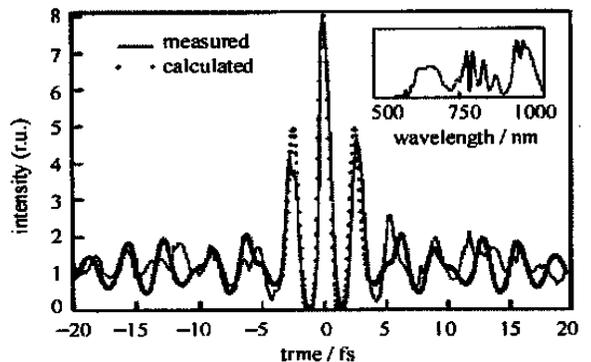


Fig 7 Intense pulses originating from double-stage pulse compression

图 7 来自双重脉冲压缩的强脉冲

### 3 强激光场和原子的相互作用及高次谐波的产生(HHG)

对微扰非线性光学而言,极化强度  $P$  可表示为:  $P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + P_{nl}$ , 其中

$$P_{nl} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \epsilon_0 \chi^{(4)} E^4 + \dots, \quad (2)$$

式中:  $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{A} \cdot \text{s} \cdot \text{V}^{-1}$  是真空中介电常数,  $\chi^{(k)}$   $[(\text{m}/\text{V})^{k-1}]$  是第  $k$  阶电极化率。当不考虑无束缚跃迁时,线性和非线性的光极化场的量子理论可得到下面简单的近似表达式

$$\frac{\chi^{(k+1)} E^{k+1}}{\chi^{(k)} E^k} = \frac{\mu_{jk} E_a}{\hbar \Delta} = \frac{e E_a a_B}{\hbar \Delta} = \alpha_{6b} \quad (3)$$

方程(3)为方程(2)中连续项的比率,其中  $E_a$  为辐射振幅,  $\hbar$  是普朗克常数,  $a_B$  是玻尔半径。通过对无束缚跃迁 Keldysh 的分析可以得出标量参数为

$$\frac{1}{\gamma} = \frac{e E_a}{\omega \sqrt{2mW_b}} = \frac{e E_a a_B}{\hbar \omega} = \alpha_{6r} \quad (4)$$

其中  $m$  是静止电子质量,  $e$  是电子电荷,  $\omega$  是载波角频率,  $W_b$  是电势能。

对于强场情况而言,当  $\gamma^{-1} > 1$ , 激光场强烈地压制库仑势垒使能量为  $-W_b$  的电子穿过势垒到达其外侧  $x_0$  处,如图 8 所示。光致电离介质的基本定律为

$$\dot{P}_{nl}(t) = \frac{e^2}{m} n_e(t) E(t) + W_b \frac{\partial}{\partial E(t)} \left( \frac{n_e(t)}{E(t)} \right) \quad (5)$$

其中,  $n_e(t) = n_a (1 - \exp[-w \int \{E(t')\} dt'])$ ,  $n_a$  是原子的密度,  $w(E)$  是OFI电离率。

在超紫外(XUV)和软 X-射线光谱区,线性极化的超强超短激光脉冲和原子、原子簇及分子的相互作用是 HHG 辐射的原因。HHG 具有适度的泵浦能和很好的相干性, 这为发展小型实验短波源提出了很有前途的方法,最近 HHG 的快速进展在核中心能级、等离子谱学、X 射线荧光分析中第一次应用了;但在许多其它的潜在的应用方面, HHG 的效率还很低, 主要原因是 HHG 伴随自由电子的产生,使基频光束和谐频光束之间存在相位差,约束了谐辐射能够增加的最大相干长度。在高电子密度处激光脉冲的波长变得更短,随着谐波次数的增加相位不匹配迅速增加,限制了可得到的谐波的最高次数。解决这些基本问题将会引起许多变革性的应用,如实验室 X-射线全息摄影、飞秒时间分辨率 X-射线衍射和吸收实验等等。

最近,实验证明,使用超短驱动脉冲能够迅速减少相位不匹配,从而提高了转换效率,且第一次把 HHG 的范围延伸到水窗波段。另外,理论分析已预言了利用几个周期驱动 HHG 能形成阿秒( $10^{18}$ s)脉冲。在维也纳技术大学<sup>[6]</sup>已得到了可和理论结果相比拟的实验数据,他们用小于 10fs 脉宽的激光脉冲驱动高次谐振源,在此源中激光脉冲和原子通过一支薄镍管而相互作用,泵浦激光脉冲冲击穿试管得到一些小孔,激光脉冲挤压试管而形成如图 9 所示的有效相互作用长度( $< 0.2\text{mm}$ ),使用基于光栅摄谱仪的色散分光法已得到了从真空紫外到软 X-射线的高次谐振辐射的光谱特性。

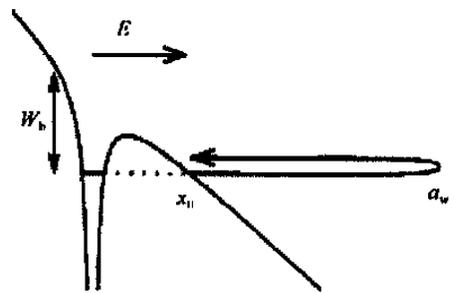


Fig 8 Excursion of the most weakly bound electron  
图 8 最弱的束缚电子的漂移图

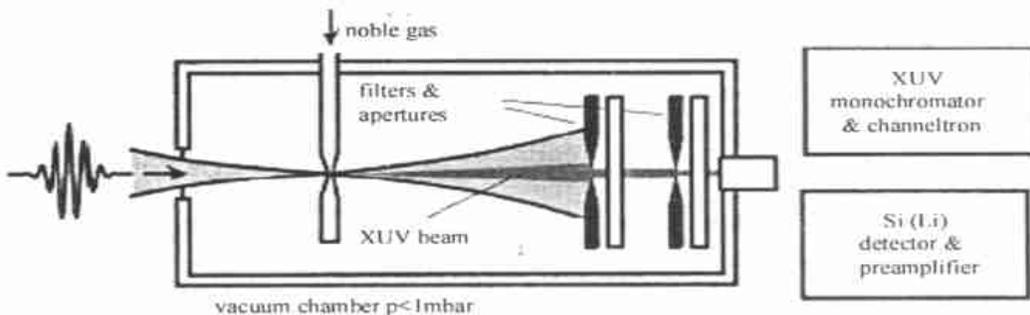


Fig 9 Schematic diagram of the experimental setup of a typical high harmonic generation experiment  
图 9 典型的 HHG 的实验装置示意图

微观分析: 穿透电离率  $a_{\text{ion}}$  及已电离的电子再结合成原子的基态结合率  $a_{\text{rec}}$ , 它们的振幅反映了参与 HHG 的独立过程, 且可用半导体模型来解释, 如图 10 所示, 在时刻  $t_0$  以穿透电离率  $a_{\text{ion}}$  电离电子, 用  $\tilde{a}_{\text{pr}}$  来描绘电离后的电子在强激光场中的传输, 大约经过一个振荡周期后在时刻  $t$  电离的电子返回到原子核, 再以结合率  $a_{\text{rec}}$  结合成原子的基态, 同时发射高能光子并释放它们在激光场中获得的能量与电势能  $W_b$  之和, 由于在多个周期的激光场中此过程准周期重复, 由此产生的离散的偶极发射光谱是由频率为  $\omega_0$  的奇调和激光脉冲组成的。图 11 描述了周期为 30fs 波长为  $\lambda_0 = 800\text{nm}$  的激光脉冲照射 Ne 原子所得到的典型的高次谐波, 且显示了离散的高次谐波的高分辨率。相比之下, 对周期为 7fs 的脉冲驱动器而言, 高次谐波的离散性不太明确甚至在截断处完全消失, 这是由于几个周期的最高次谐波是由峰值附近的单电子束产生的, 因此 HHG 的周期完全被压缩了。然而, 除量子差异外, 谐波的光谱结构通过计算近截断处的高的光电子能模型很好地再现了。低次谐波的光谱结构和模型计算的一致性变差主要是由于简化模型中忽略了库仑势的影响, 而低次谐波是由具有低动能的电子返回到原子核形成的, 且这些电子受原子库仑场的影响很大的。

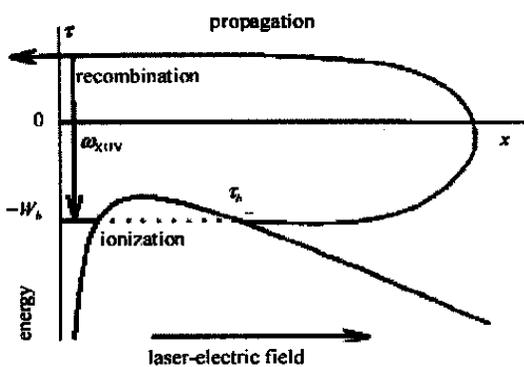


Fig. 10 Schematic illustration of the elementary processes responsible for high harmonic generation

图 10 HHG 本质进程示意图

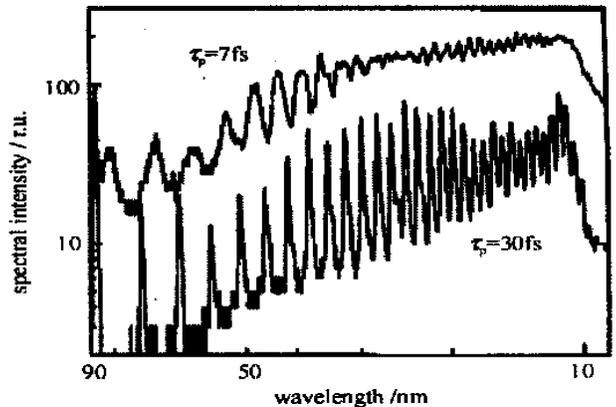


Fig. 11 Harmonic spectra generated in neon for Ti sapphire laser pulses

图 11 激光脉冲照射 Ne 原子得到高次谐波图

宏观分析: 尽管 HHG 实验的许多重要特性可用单原子理论理解, 但详细地比较实验和宏观理论可知还有约束谐波的最大产生率的三个传输效应, 即吸收、解相、散焦。具体的讨论见文献 [1]。

下面介绍阿秒 X-射线脉冲的产生。在时间域内, 一个激光振荡周期内的谐波发射被约束在  $T_0/2$  中的一小部分, 产生了一系列短波辐射的亚飞秒或阿秒脉冲, 尽管 HHG 的转化效率比其它的阿秒脉冲的产生的转化效率要低, 但高次谐波存在若干个可使阿秒脉冲成为脉冲串输出的几率。利用单次阿秒脉冲为时间尺度是亚飞秒的 XUV/X-射线泵浦实验铺平了道路, 例如: 介质或质子数高的原子内层电子的驰豫过程的时间尺度。最近, Markus Drescher 等人 [7] 用脉宽为 7fs、波长为 770nm (1.6eV) 的 HHG 产生了能量为 90eV 的单次软 X-射线脉冲, 其特点是驱动激光脉冲光致电离 Kr 原子; 测量周期为 1.8fs 的离散 X-射线脉冲, 此周期比驱动激光脉冲的光学振荡周期 (2.6fs) 更短, 这种方法在 X-射线的大范围内提供了亚飞秒时间分辨率, 为实验得到阿秒脉冲铺平了道路。

#### 4 总 结

在强场物理中, 几个周期强激光脉冲已发展到了从未得到的参数范围 (如: HHG 的范围, 时间尺度, 飞秒分辨率等), 几个周期激光感应强场的过程第一次提出了获得载波相位及由此利用激光场的愿望。脉冲周期接近原子时标, 第一次让束缚态的低的主量子数的量子示踪特征化。几个周期的强激光脉冲可能成为从 XUV 到硬 X-射线区的超短脉冲短波辐射的最有效的泵浦源。在 XUV 和软 X-射线波长区, Brabec T 等人 [1] 证明了几个周期脉冲驱动高次谐波达到了可探测两个受激光子的亮度峰值。激光形成几个周期或者更短的 X-射线的脉冲, 将允许示踪原子在大范围内运动, 包括固相变化、气相和液相变化、化学键的形成和断裂、象蛋白质隆缩一样重要的生物过程, 这些都可以通过 X-射线衍射和吸收得到。总之, 未来的超快光学和强场物理将会继续迅速地发展, 接近光学振荡周期的超强超短脉冲的产生对研究领域迎来了新的挑战, 如像进入光电磁场或阿秒计量学的诞生的重大成果一样, 为进一步研究大量场的意义提供主要的驱动力。

## 参考文献:

- [1] Brabec T, Krausz F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics[J]. *Rev Mod Phys*, 2000, **72**(2): 545—591.
- [2] Backus S, Durfee C G, Mourou G, et al. 0.2-TW laser system at 1 kHz[J]. *Opt Lett*, 1997, **22**(16): 1256—1258.
- [3] Nibbering E T, Duhr J O, Korn G. Generation of intense tunable 20-fs pulses near 400nm by use of a gas-filled hollow waveguide[J]. *Opt Lett*, 1997, **22**(17): 1355—1337.
- [4] Nabekawa Y, Kuramoto Y, Togashi T, et al. Generation of 0.66-TW pulses at 1 kHz by a Ti:sapphire laser[J]. *Opt Lett*, 1998, **23**(17): 1384—1386.
- [5] Xu L, Tempea G, Spielmann Ch, et al. Continuous-wave mode-locked Ti:sapphire laser focusable to  $5.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [J]. *Opt Lett*, 1998, **23**(10): 789—791.
- [6] Schnürer M, Spielmann C, Wobrauschek P, et al. Coherent 0.5-keV X-Ray Emission from Helium Driven by a Sub-10-fs Laser[J]. *Phys Rev Lett*, 1998, **80**(15): 3236—3239.
- [7] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier[J]. *Science*, 2001, **291**: 1923—1927.

## Laser development of femtosecond nonlinear optics

DENG Dongmei, GUO Hong

(Laboratory of Light Transmission Optics, South China Normal University, Guangzhou, Guangdong 510631, China)

**Abstract** The latest development of research on femtosecond nonlinear optics is introduced in this article. Recent progress in ultrafast optics has allowed the generation of ultraintense light pulses comprising merely a few field oscillation cycles. The arising intensity gradient allows electrons to survive in their bound atomic state up to external field strengths many times higher than the binding Coulomb field and gives rise to ionization rates comparable to the light frequency resulting in a significant extension of the frontiers of nonlinear optics and (nonrelativistic) high field physics. Implications include the generation of coherent harmonic radiation up to keV photon energies.

**Key words** ultrashort laser pulse; chirped pulse amplification; nonlinear response; high harmonic generation