采用 SHG-FROG 单次测量红外长波长超快 激光脉冲宽度和相位

许灿华 冷雨欣 张春梅 黄延穗 陆效明 葛晓春 李 闾 宋立伟 陈晓伟 (中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室,上海 201800)

摘要 描述了一套二次谐波型频率分辨光学快门(SHG-FROG)装置,用于单次测量红外长波长超快激光脉冲的脉 宽和相位信息。针对在该波段宽带的高损伤阈值介质膜镀膜困难,且价格昂贵的问题,采用两个半圆形全反平面 银镜来代替传统的半透半反镜进行分光。同时改进后的光路可以减少测量误差,结构更加紧凑且便于调节。采用 该装置对基于钛宝石参量放大的红外超快脉冲进行测试,得到当中心波长为 1.8 μm 时,脉宽为 66.9 fs,谱宽 54.5 nm,谱相中的二阶群延时色散(GDD)为 202.9 fs²。

关键词 超快光学;频率分辨光学快门;红外;超快激光

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.0308004

Using SHG-FROG to Measure Intensity and Phase of Infrared Long Wavelength Ultra-Fast Laser Pulse in Single Shot

Xu Canhua Leng Yuxin Zhang Chunmei Huang Yansui Lu Xiaoming Ge Xiaochun Li Chuang Song Liwei Chen Xiaowei

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract A frequency-resolved optical gating (FROG) apparatus which can be used to measure the intensity and phase of infrared long wavelength ultra-fast laser pulse in single-shot is described. Because the high damage threshold coating in this waveband is difficult and expensive, we use two half-semicircle mirrors to substitute traditional transmitted beam splitter. Meanwhile, error of measurement in the improved configuration will be diminished, and the whole device becomes more compact and easier to be adjusted. We utilized the apparatus to characterize optical parametric amplifier ultra-fast pulse pumped by Ti: sapphire laser. With the center-wavelength of 1.8 μ m, the pulse has duration of 66.9 fs and spectral width of 54.5 nm. The group delay dispersion (GDD) in spectrum region is 202.9 fs². **Key words** ultra-fast optics; frequency-resolved optical gating; infrared; ultra-fast laser **OCIS codes** 320.7090; 320.7100; 320.7160; 140.7090

1 引 言

阿秒脉冲激光的出现使得人类可以对原子尺度 的电子运动进行实时监测和操控^[1]。实验上通常利 用钛宝石激光器产生的 0.8 μm 波长的激光脉冲与 原子或分子气体相互作用产生高次谐波来获得阿秒 脉冲^[2~4],目前可以实现的最短的单个阿秒脉冲已 可以做到 80 as^[5]。理论上利用 0.8 μm 波长的激光 脉冲驱动产生更短的阿秒脉冲已非常困难,要想获 得更短时间尺度的阿秒激光脉冲,需要采用更长波 长的驱动激光,例如 1.5~3 μm 的波段^[6]。该波段

收稿日期: 2010-09-01; 收到修改稿日期: 2010-10-11

基金项目:国家 973 计划(2006CB806001)、国家自然科学基金(60921004,60908008)和上海市科委项目(09QA1406500) 资助课题。

作者简介:许灿华(1978—),男,博士研究生,主要从事中红外波段超快激光测量方面的研究。

E-mail: canhua_xu@siom.ac.cn

导师简介:冷雨欣(1975—),男,研究员,博士生导师,主要从事超快强场激光系统方面的研究。 E-mail: lengyuxin@mail.siom.ac.cn 超快激光器已成为阿秒科学发展的关键。

随着超快激光技术的发展,目前超短强激光脉 冲的工作波段已经可以拓展到 1.5 μm 乃至更长的 波段,例如基于10 mJ/kHz 钛宝石激光器的光学参 量放大(OPA)装置,可以输出载波包络相位(CEP) 稳定的脉宽约 50 fs,中心波长在 1.2~2.4 µm 连续 可调的红外激光脉冲,其最大输出单发能量可达 1.5 mJ^[7]。为了进一步发展并应用红外长波长超快 强激光,急需发展相应的脉宽和相位信息的准确测 量技术和装置。目前能同时测量超快脉冲的脉宽和 相位的主要有频率分辨光学快门(FROG)^[8]和光 谱相位相干直接电场重构(SPIDER)^[9,10]两种方法。 一般来说 FROG 装置结构比较简单但是算法比较 复杂,而 SPIDER 正好相反。对于测量复杂的或者 周期量级的脉冲,用 FROG 更有优势^[11,12]。所以目 前 FROG 装置在测量不同脉宽^[13,14]、不同波段^[15,16] 都得到了广泛的应用。通常的光学探测元件如 CCD 工作在 0.8 µm 或 1 µm 附近的近红外波段,而 在红外长波长波段的光学元件较缺乏,因此本文采 用和频的 FROG 技术来测量该波段的超快脉冲。

本文将 SHG-FROG 测量技术拓展到红外长波 长的工作波段,搭建了一套 FROG 测试设备,用于 测量该波段超快激光脉冲的宽度和相位。在传统结 构的基础上对分光光路进行改进,避开该波段介质 膜镀膜的困难。同时可以提高 FROG 装置的测量 精度且使结构更加紧凑。还介绍了改进结构后的 FROG 装置的定标方法,对中心波长为 1.8 μm 的 钛宝石激光抽运的 OPA 超快脉冲进行测量,并采 用广义投影算法进行反演计算,得到了可靠的脉冲 宽度和相位信息。

2 实验装置

FROG 装置如图 1 所示。由中心波长 0.8 µm, 10 mJ/kHz 钛宝石激光器 (Coherent LEGEND-HE-Cryo)抽运的 OPA 系统可以输出 CEP 稳定、中 心波长在 1.2~2.4 µm 连续可调的红外激光脉冲。 实验测量 0.8 µm 抽运光的脉冲宽度为 49.3 fs。 OPA 输出脉冲在中心波长为 1.8 µm 时最大单发输 出能量可达 1.5 mJ,光斑直径大约为 10 mm。该光 束经过高低镜架调整高度后,通过上下方向紧临放 置的两个半圆形平面银镜进行反射。两个全反半圆 镜片可以独立调节,将入射光分成在垂直桌向小角 度(大约 3°)上下相互交叉的两半圆形子光束。由 于红外长波长波段的宽带高阈值介质膜镀膜较困 难,该分光方法跟传统的半透半反镜相比可以避免 分光镜透射率不一致带来的影响。同时保证 FROG 装置在非线性晶体之前没有透射元件,减小测试误 差。两路子光束的延时调节很方便,基本上将两个 半圆镜片对齐延时就接近零。而且该光路结构紧 凑,使整个 FROG 装置可以安装在一个 20 cm× 30 cm的光学平板上,在实验中使用非常方便。



图 1 FROG 装置简图 Fig. 1 Sketch of FROG apparatus

两路子光束在非线性晶体中交叠进行和频。该 FROG装置采用 BBO 作为和频晶体,厚度为 100 μm,切割角选为 19°对应 1.8 μm 波段的倍频匹 配角。如果测量的带宽为 70 nm(双曲正割脉冲对 应转换极限约 50 fs),在该厚度下晶体有足够的倍 频带宽[17]。晶体中群速度不匹配造成的脉宽延长 为 2.7 fs, 对测量结果影响较小。紧挨 BBO 晶体之 后放置一个宽度约为 0.5 mm 竖直方向狭缝。该狭 缝是为了在水平方向上减少光斑大小对 FROG 图谱 的影响,但在竖直方向保留了延时信息。利用 75 mm 的透镜 4f 成像将狭缝上的光成像到 CCD(LW230 SPIRICON)上。随后和频光经过一个 600 line/mm 的光栅衍射,用 CCD 记录所得到的衍射图。由于经 过透镜聚焦后基频光与倍频光的夹角较小,在 CCD 接收面的位置无法完全分离,在透镜后焦距的位置 (此时基频光与倍频光上下分离量最大)加一个水平 方向的狭缝以挡住剩余的基频光。

由于 OPA 系统的非共线角在水平方向上,其输 出脉冲在水平方向上可能存在较大的空间啁啾,而在 竖直方向空间啁啾可以忽略。上述分光产生的两路 子光束在水平方向可以调节至完全重合,所以脉冲的 空间啁啾对测试结果的影响可以忽略。

3 FROG 的定标和所测脉冲的空间 强度分布与空间啁啾的影响

FROG 装置的定标包括图谱中延时方向的定标和光谱方向的定标。延时方向即 FROG 图谱纵向,两路子光束之间的延时可以通过前后移动双半

圆镜的一个镜片,观察 FROG 图谱在该方向上的移动量来确定每个数据点所对应的时间延时。在实验中当一个半圆镜片移动 10 μ m 时,对应的子光束延迟了 66.7 μ m。图谱在纵向移动了 108 pixel。则在每个像素对应的延时 $\Delta \tau = 0.62$ fs。

FROG 图谱的横向即光谱方向可以采用传统 光谱的方法例如用钨灯进行定标,但是这种方法定 标后光路不能再作调整,在实验中使用很不方便。 由于 FROG 图谱在延时方向积分对应了基频光谱 的卷积,也正比于倍频光谱^[18]

$$M(2\omega) = \int M(\xi) M(\omega - \xi) d\xi = \int I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) d\tau,$$
(1)

式中 $M(2\omega)$ 和 $M(\omega)$ 分别指和频谱和基频谱的强度 分布。根据(1)式可以用独立测量的和频光谱对 FROG图谱进行定标。在实验中采用光纤光谱仪 (USB4000 Ocean Optics)独立测量激光脉冲和频后 0.9 μ m光的光谱。其半峰全宽为 23.12 nm,对应频 宽为 8.57×10¹² Hz。而 FROG 图谱沿延时方向积分 后得到的函数半峰全宽对应 8 pixel。则每个像素对 应的频宽为 $\Delta\nu$ =9.22×10¹⁰ Hz。

在 FROG 图谱中,测量 50 fs 的脉冲所需要的 延时宽度可以估计为 200 fs,对应约 320 pixel。所 用的 CCD 每个像素大小为 4.4 μm,对应纵向的空 间宽度约为 1.4 mm。由于 FROG 装置中采用 4*f* 成像结构,在 BBO 晶体的竖直方向上两束子光束只 需交叠 1.4 mm 就可以满足测量的延时宽度要求。 对于小角度共线结构的 OPA 系统,其输出脉冲具 有较好的光束质量,可以假设为高斯型分布^[19]。在 离原光斑中心 1.4 mm 处强度与中心强度比值为 exp[-(1.4/5)²]=0.92,两者非常接近。而且两个 子光束的最强处分别与对方 1.4 mm 处光强产生和 频,其空间强度不均匀对和频光的强度和最终测试 结果的影响可以忽略。当所测量的脉宽变短时,所 需的延时窗口会减小,从而空间强度分布及空间啁 啾的影响会更小。

4 实验结果和讨论

采用广义投影算法(PCGPA)^[20,21]编译程序对 FROG 图谱进行反演计算。一般对实验测量的图 谱进行反演计算之前,先需要预处理:包括过扣除平 均背景,用超高斯函数进行边缘压缩以及利用二维 高斯变换进行低通滤波等,具体方法可以参考文献 [22]。实验中 CCD 测量得到的 FROG 图谱和经过 预处理的图谱如图 2 所示。*x* 轴对应延时,*y* 轴对应 光谱,*z* 轴是归一化的强度。图 2(a)是未经过任何处 理的实验数据,图 2(b)是经处理后的数据。可以看 出经过处理后随机噪声得到了很好的抑制。



图 2 FROG 图谱比较。(a)未经处理的实验数据,(b)经过 平均噪声扣除、边缘压缩和低通滤波处理后的数据

Fig. 2 Comparison of SHG-FROG trace. (a) experimental data, (b) after subtraction of mean of the noise, corner suppression and low-pass filtering

因为 FROG 反演是从随机函数开始计算的,对 同一次实验结果每次反演计算得出的结果会存在一 定的差别。对实验结果计算 20 次,得出的脉宽的平 均值为 66.9 fs,均方差为 4.03 fs。而谱宽的平均值 为 54.5 nm,均方差为 5.52 nm。可以计算时间带宽 乘积(TBP)为 0.338。而双曲正割脉冲的 TBP 极限 为 0.315,可见 OPA 输出的激光脉冲展宽很小。

图 3 给出了反演计算的结果,图 3(a)是时间域 内的光强以及相位分布,图 3(b)是随波长分布的谱 强度以及谱相位。强度由曲线给出,相位分布由实 心点给出数据。强度经过归一化处理,相位除了 2π。在光谱域内采用多项式对谱相位分布进行拟 合,可以得到 1.8 μm 激光脉冲的二阶群延时色散 (GDD)为 202.9 fs²,是一个较小的值。色散主要是 由 1.8 μm 激光在 OPA 过程中通过透镜以及 BBO 晶体等材料引入的。

FROG测试结果的误差包括装置带来的实验 误差和反演算法带来的计算误差两方面。其中实验 误差包含 BBO 的厚度带来的色散及光栅和 CCD 元 件光谱响应不一致带来的光谱畸变等。如前所述, BBO 晶体厚度带来的误差约为 2.7 fs,光栅和 CCD 元件光谱响应带来的影响会体现在 FROG 图谱上, 当所测量的光谱范围比较宽时,光谱响应不一致就 会使 FROG 反演计算的结果余差较大



图 3 从实验数据反演计算出的脉冲。(a)时间域内的 强度和相位,(b)光谱(波长)域内的强度和相位分布

Fig. 3 Retrieved pulse for the experimental data. (a) intensity and phase in time domain, (b) intensity and phase in spectrum (wavelength) domain

$$E_{\text{ERROR}} = \left\{ \frac{1}{N^2} \sum_{\omega,\tau=1}^{N} \left[I_{\text{FROG}}(\omega,\tau) - \left| E_{\text{sig}}(\omega,\tau) \right|^2 \right]^2 \right\}^{1/2}.$$
(2)

FROG 的反演计算的余差^[19]可以表示成(2) 式,对实验结果进行 20 次反演计算的 FROG 余差 平均值为 0.0037。余差无法继续收敛主要是由上 述 BBO 厚度以及光栅和 CCD 元件对光谱响应不一 致造成的,还有可能是所测量的光斑分布不均匀等 带来的影响。最终 FROG 余差较大带来的影响都 会体现在多次反演计算结果的均方差中。

图 4(a) 是计算出的 FROG 图谱,图 4(b) 为处 理后的实验数据。为了更直观,图中给出了等高线 分布,横坐标为延时方向,纵坐标为光谱方向,这两 者相差非常小,FROG 反演计算得到的光强和相位 的图谱与实验结果吻合很好。





Fig. 4 Comparison of (a) retrieved FROG trace and

(b) experimental data in a contour view

由于在该设计中,采用两半圆形全反镜代替半 透半反镜进行分光,使整个装置不再依赖红外长波 长波段的镀膜。FROG 装置所能测试的波长完全 由 BBO 晶体的倍频角度决定,适当选择 BBO 晶体 的切割角,可以测量 1.2~2.4 μ m 范围内的超短脉 冲。而且脉宽范围只限制于所测量的超快脉冲在 BBO 晶体中产生群速度失配以及倍频带宽带来的 影响。目前用的 100 μ m 厚的 BBO 晶体只适合测 量 30 fs 以上的脉冲。如果采用更薄的 BBO 晶体例 如 10 μ m^[17],可以直接推广至周期量级的红外长波 长超快脉冲的精确测量中。

5 结 论

搭建了一套用于单次测量红外长波长超快脉冲 的 SHG-FROG 装置。通过采用两个半圆形全反平 面镜进行分光,减少透射元件带来的误差,使装置更 加紧凑方便地在实验室中使用。更重要的是采用该 分光方法后,器件没有镀膜的限制,可以应用于不同 的波段超快脉冲的测试。只要采用适当厚度的晶体, 可以直接推广到周期量级脉冲的精确测量中。对本 实验室已有的钛宝石激光抽运的 OPA 系统进行测 量,采用广义投影算法计算得到当 OPA 输出脉冲中 心波长为 1.8 μm 时其脉宽为 66.9 fs,谱宽 54.5 nm 以及相应的相位信息。

参考文献

- 1 P. B. Corkum, F. Krausz. Attosecond Science [J]. Nature Phys., 2007, 3(6): 381~387
- 2 I. P. Christov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn. Highharmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(7): 1251~1254
- 3 Zeng Zhinan, Cheng Ya, Song Xiaohong *et al.*. Generation of an extreme ultraviolet supercontinuum in a two-color laser field[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(20): 203901
- 4 Zheng Yinhui, Zeng Zhinan, Zou Pu et al.. Dynamic chirp control and pulse compression for attosecond high-order harmonic emission[J]. Phys. Rev. Lett., 2009, 103(4): 043904
- 5 E. Goulielmakis. Single-cycle nonlinear optics [J]. Science, 2008, 320(5883): 1614~1617
- 6 P. Colosimo. Scaling strong-field interaction towards the classical limit[J]. Nature Phys., 2008, 4(5): 386~389
- 7 Zhang Chunmei, Wei Pengfei, Huang Yansui et al.. Tunable phase-stabilized infrared optical parametric amplifier for highorder harmonic generation [J]. Opt. Lett., 2009, 34 (18): 2730~2732
- 8 D. J. Kane, R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency resolved optical gating[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1993, **29**(2): 571~579
- 9 C. Iaconis, I. A. Walmsley. Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1999, **35**(4): 501~509

10 Cao Shiying, Deng Yuqiang, Sun Qing *et al.*. Effects of replicas separation on measurement of femtosecond optical pulses with SPIDER[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(7): 1827~1831 曹士英,邓玉强,孙 青等.复制脉冲对的时间延时对光谱相位相干直接电场重构法测量飞秒脉冲的影响[J].中国激光,2010, **37**(7): 1827~1831

11 Liu Jun, Wen Jinhui, Zhang Yanwei et al.. Applicability problem in characterization of femtosecond pulses with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction[J]. Chinese J. Lasers, 2009, 36(5): 1175~1179

刘 俊, 文锦辉, 张燕伟等. 光谱相位相干直接电场重构法测量 飞秒脉冲的使用性问题 [J]. 中国激光, 2009, **36**(5): 1175~1179

- 12 S. Akturk, C. D. Amico, A. Mysyrowicz. Measuring ultrashort pulses in the single-cycle regime using frequency-resolved optical gating[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 2008, 25(6): 63~69
- 13 S. Akturk, M. Kimmel. Extremely simple device for measuring 20 fs pulses[J]. Opt. Lett., 2004, 29(9): 1025~1027
- 14 S. Akturk, X. Gu, R. Trebino. Practical device for measuring extremely short and extremely long pulses [C]. IEEE/CLEO Europe, 2005
- 15 S. Akturk, M. Kimmel. Measuring several-cycle 1.5-μm pulses using frequency-resolved optical gating[J]. Opt. Express, 2003, 11(25): 3461~3466
- 16 S. Backus, J. Peatross, E. Zeek *et al.*. 16-fs, 1-mJ ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air[J]. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(9): 665~667
- 17 A. Baltuska, M. S. Pshenichnikov, D. A. Wiersma. Secondharmonic generation frequency-resolved optical gating in the

single-cycle regime [J]. IEEE J. Quantum Electron., 1999, $35(4):459{\sim}478$

- 18 K. W. Delong, M. Zeee, D. N. Fittinghoff *et al.*. Practical Issues in ultrashort laser-pulse measurement using frequencyresolved optical gating[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1996, 32(7): 1253~1264
- 19 Fuling Zhang, Yanhai Wang, Meizhi Sun *et al.*. Numerical simulations of the impact of wavefront phase distortions of pump on the beam quality of OPA[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2010, 8(2): 217~220
- 20 D. J. Kane, G. Rodriguez, A. J. Taylor *et al.*. Simultaneous measurement of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram in single spectrogram in a single shot[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1997, **14**(4): 935~943
- 21 D. J. Kane. Real-time measurement of ultrashort laser pulses using principal-components generalized projections[J]. *IEEE J.* Sel. Top. Quantum Electron., 1998, 4(2): 278~284
- 22 D. N. Fittinghoff, K. W. Delong, R. Trebino *et al.*. Noise sensitivity in frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses [J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1995, **12**(10): 1955~1967