

强飞秒激光在氟化钙晶体中产生的超连续谱

李子熙^{1,2}, 龚成^{1*}, 华林强¹, 柳晓军^{1**}

¹中国科学院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 湖北 武汉 430071;

²中国科学院大学, 北京 100049

摘要 实验研究了不同入射激光能量和晶体取向条件下, 强飞秒激光在氟化钙晶体中成丝产生的超连续谱。实验发现, 由于晶体中存在光强钳制效应, 在一定入射激光能量范围内, 超连续谱的最大蓝移截止波长为 300 nm, 且不随能量发生变化。同时发现, 该最大蓝移截止波长不依赖于晶体取向的变化, 但超连续谱的强度将随晶体的取向发生明显变化。

关键词 超快激光; 飞秒激光成丝; 超连续谱; 光强钳制; 晶体取向

中图分类号 O437

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0508021

Supercontinuum Generation in Calcium Fluoride Crystals Using High-Intensity Femtosecond Laser

Li Zixi^{1,2}, Gong Cheng^{1*}, Hua Linqiang¹, Liu Xiaojun^{1**}

¹State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan, Hubei 430071, China;

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract In this study, the supercontinuum generation in calcium fluoride (CaF_2) crystals are measured during high-intensity femtosecond laser filamentation under different incident laser energies and various crystal orientations. The experimental results show that the maximum blue-shifted cut-off wavelength of the supercontinuum spectrum remains constant at 300 nm for a broad range of incident laser energies because of the intensity clamping effect. Moreover, the maximum blue-shifted cut-off wavelength is also independent on the crystal orientation, but the intensity of supercontinuum significantly varies with the crystal orientation.

Key words ultrafast laser; femtosecond laser filamentation; supercontinuum; intensity clamping; crystal orientation

OCIS codes 190.0190; 320.7110; 320.7150

1 引言

当强飞秒激光在透明介质中传输时, 由于各种线性和非线性光学效应的共同作用, 光束可实现稳定的自引导传输, 使激光脉冲在时间和空间分布上达到相对稳定, 这种现象被称为飞秒激光成丝^[1]。自 1995 年首次在空气中观测到飞秒激光脉冲成丝以来^[2], 人们发现许多伴随飞秒激光在透明介质中成丝所产生的丰富而有趣的现象, 如自聚焦^[3]、光强钳制^[4]、超连续谱产生^[5]、锥角辐射^[6]、稳定等离子

体通道的形成^[7]等。同时, 强飞秒激光成丝在大气遥感^[8]、激光引雷^[9]、人工模拟降雨降雪^[10-11]、太赫兹辐射产生^[12-13]、激光加工^[14-15]等方面均具有广泛的应用。因此, 飞秒激光成丝已经引起各国科学家的重视, 成为一个热门的研究课题。

人们一直致力于飞秒激光成丝物理机制的探索, 一个被人们普遍接受的物理图像是: 超短脉冲激光在透明介质中传输时, 克尔效应引起的自聚焦效应、强场电离引起的等离子体散焦效应和衍射效应达到动态平衡^[1], 从而形成光丝。当此平衡形成后,

收稿日期: 2019-01-02; 修回日期: 2019-03-04; 录用日期: 2019-03-11

基金项目: 国家重大科研仪器研制项目(11527807)

* E-mail: gongcheng@wipm.ac.cn; ** E-mail: xjliu@wipm.ac.cn

激光的峰值光强会达到一个最大值,并在一段距离内保持稳定,而且即使继续增大入射激光能量,这个峰值强度也不会发生变化,这种现象被称为光强钳制^[1,4]。正是由于光强钳制效应的存在,飞秒激光脉冲在介质中的稳定传输,促使飞秒激光与介质相互作用时激光强度在较长的距离内保持不变。同时,光强钳制对应的高光强还可以产生较强的辐射光谱,例如太赫兹辐射光谱^[12-13]、高次谐波光谱^[16]、荧光辐射光谱^[17]、超连续谱^[18-20]等。其中超连续谱的谱宽可以覆盖紫外到中红外波段,并且超连续谱的产生具有普适性,在各种透明介质(气体^[18]、液体^[19]和固体^[20])中均有发现。飞秒激光在结构紧凑的透明固体材料中成丝时产生的超连续谱具有转换效率高、易操控等特点,其在高时间分辨率的宽带抽运探测技术^[21]、超短激光脉冲压缩技术^[22]、飞秒激光参量放大技术^[23]、啁啾脉冲参量放大技术^[24]等方面具有广泛的应用。

上述应用需求促使科学家们更深入地探索固体中超连续谱的形成机制。但是,到目前为止人们还没有完全理解固体中超连续谱的产生机制。已有的研究结果表明几种非线性效应,如自相位调制效应^[25]、自陡峭效应^[26-28]、时空聚焦效应^[29]、多光子电离引起的等离子体散焦效应^[30]等,对固体中超连续谱的产生均有贡献。除此之外,色散效应也被认为在超连续谱的产生中起到重要作用^[31]。这些线性和非线性效应对固体中超连续谱产生的贡献需要进一步探索。氟化钙(CaF₂)晶体具有许多良好的物理性质,如具有较大的非线性折射率、较宽的能带带隙、较大的光谱透明范围、非线性性质各向异性等,可产生强度高、光谱范围宽的光谱,被广泛应用于与强飞秒激光相互作用产生超连续谱的研究及相关领域^[32-36]。这些研究工作主要关注超连续谱的偏振^[34,35]、啁啾^[36]、稳定性^[36]等性质。例如,Kartazaev等^[35]研究了CaF₂晶体中超连续谱的偏振特性与晶体取向角的关系,但是并没有详细研究超连续谱的强度特性以及宽度特性。然而,超连续谱在超快激光与超快光谱技术等方面的应用要求晶体产生光谱范围更大、强度更高的超连续光谱,并可对超连续谱的性质进行有效调控,而提高驱动激光的能量是实现这些目标的首要途径。与此同时,激光能量的提高将伴随着CaF₂晶体中飞秒光丝的产生。因此,有必要更深入地研究飞秒激光成丝过程对CaF₂晶体中产生超连续谱输出特性的影响。基于此,本文系统地研究了在不同的入射激光能量和

晶体取向下,强飞秒激光脉冲在CaF₂晶体中成丝时产生的超连续谱。实验发现,在一定的入射激光能量范围内,CaF₂晶体中产生的超连续谱的蓝移截止波长为300 nm,且不随激光能量的增加而改变。这主要是因为强飞秒激光在CaF₂晶体中成丝时产生了光强钳制效应。同时发现,通过调控晶体的取向,产生的超连续谱的蓝移截止波长不变,但超连续谱的强度则发生周期性变化。

2 实验装置

实验装置如图1所示。使用的飞秒激光器(Legend HE+, Coherent, 美国)主要由一个振荡器和一个再生放大器组成。它输出的光脉冲参数如下:最大能量为5 mJ,中心波长为800 nm,重复频率为1 kHz,脉冲宽度为35 fs。由于激光脉冲的能量过高,使用一个分束镜让一部分光透过,在实验中仅使用反射部分的光。利用半波片和格兰棱镜的组合对光脉冲能量进行精确调节。最终输出的光脉冲经过一个焦距f为20 cm的透镜聚焦后进入CaF₂晶体。沿(001)晶面切割的CaF₂晶体被放置在一个位移平台上,该平台可以在垂直于光的传播方向上平移,以避免光脉冲长时间作用于CaF₂晶体的同一位置而损伤晶体。激光脉冲与CaF₂晶体相互作用成丝之后,采用另一个直径为5.08 cm的透镜将超连续谱收集到积分球(IS200-4, Thorlabs, 美国),并通过光纤将超连续谱的信号传输到光谱仪。使用海洋光公司生产的QE65 pro(波长测量范围为350~1100 nm)可见光光谱仪和Maya2000 pro(波长测量范围为190~410 nm)紫外光光谱仪进行光谱采集。这两个光谱仪的光谱采集积分时间为100 ms和10 s。利用两个光谱仪测量的光谱重叠部分对两段光谱进行归一化处理,从而得到波长范围为190~1100 nm的光谱。

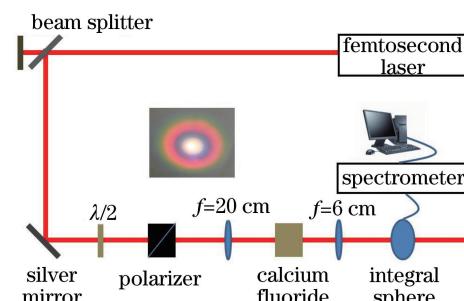


图1 实验装置图

Fig. 1 Schematic of experimental setup

3 结果与讨论

图 2 所示为实验测量得到的在不同入射激光能量下,激光脉冲与 2 cm 厚的 CaF₂ 晶体相互作用产生的光谱信号,其中无孔实线代表入射飞秒激光的初始光谱。成丝阈值能量约为 1.5 μJ。从图 2 可以看出,在较低光强下(成丝之前),光谱强度随着光强的增加逐渐增强,并且光谱的宽度也随着光强的增加发生均匀对称的展宽。在较高光强下(成丝之后),光谱的强度继续增加,但光谱的宽度不再呈现对称性展宽,蓝移方向的展宽比红移方向展宽大。当入射激光能量增加到 4 μJ 时,产生的超连续谱不再展宽,这主要是因为此时 CaF₂ 晶体中出现了光强钳制现象^[37]。光强钳制的产生原因是克尔自聚焦效应与等离子体散焦效应达到了动态平衡^[37]。此时,频谱的变化可以表示为

$$\Delta\omega(z,t) = -aI_0 \frac{\partial f(t)}{\partial t} + bI_0^m f^m(t), \quad (1)$$

式中: I_0 为峰值光强; $f(t)$ 为脉冲包络函数; z 为距离; t 为时间; m 为电子从价带跃迁到导带所需要的最小光子数; a 和 b 为两个与时间无关的常数,其定义与参考文献[37]一致。(1)式等号右边的两项分别代表自相位调制效应和电离效应。需要注意的是,这两项对峰值光强的依赖程度是不一样的:自相位调制效应正比于光强,而电离效应则正比于光强的 m 次方。在较低光强下,等离子体尚未发生电离,可以忽略这一项的贡献,此时光谱变化主要由自相位调制效应引起。由于激光脉冲有上升沿和下降沿,自相位调制效应会使光谱向着红移和蓝移的方向对称性展宽。而在高光强下,电离效应将起主导作用,并且这一项始终为正值,导致光谱蓝移方向的展宽比红移方向更明显。当入射激光能量为 6 μJ 时,超连续谱出现干涉现象,这表明产生了多段光丝;当继续增大入射激光的能量(例如 30 μJ),超连

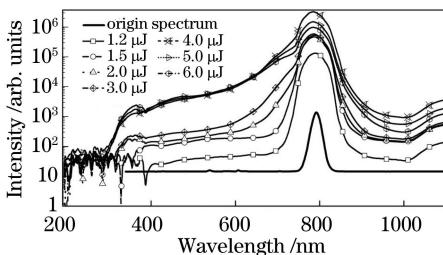


图 2 不同入射激光能量下测得的超连续光谱

Fig. 2 Supercontinuum measured under different incident laser energies

续谱开始变得模糊,表明晶体产生多丝;当入射激光能量继续增大(例如 100 μJ 以上),超连续谱甚至消失,这表明晶体已经被损坏。值得说明的是,人们普遍关注的是晶体损伤能量阈值下的实验现象。当产生多段光丝时,超连续谱的高频端截止频率并没有改变,这表明即使产生了多段光丝,光强钳制效应仍然存在。

从图 2 可以看出,测得的超连续谱蓝移截止波长达到了 300 nm。注意到 CaF₂ 晶体在 310 nm 到 350 nm 之间可以产生荧光^[38-39],为了排除荧光信号对实验测得的超连续谱(300~350 nm 范围)的影响,在 CaF₂ 晶体和收集透镜之间放置一个同轴的孔径为 1 inch(2.54 cm) 的可变光阑。通过改变光阑孔径的大小控制光谱的通过量,进而测量不同光阑孔径下的光谱,实验结果如图 3 所示。可以看到:当光阑全开时,超连续谱对应的蓝移截止波长可达 300 nm,如图 3 中方孔实线所示;当光阑变小(孔径约 6 mm)时,如图 3 中圆孔实线所示,光谱强度降低,并且蓝移截止波长变为 320 nm;当进一步减小光阑孔径至 2 mm 时,如图 3 中三角孔实线所示,光谱强度继续降低,超连续谱的宽度变得更窄,蓝移截止波长约为 340 nm,这说明波长小于 340 nm 的这一段光谱源于发散角较大的超连续谱,而不是各向同性的荧光信号。如果 300~350 nm 范围的光谱是 CaF₂ 晶体的辐射荧光,其空间分布将呈现各向同性,此时改变光阑大小只会改变光谱强度,而不会改变光谱宽度。反之,如果这部分光谱对应飞秒激光在 CaF₂ 晶体中成丝时产生的超连续谱,根据超连续谱产生的物理机制(如 X 波模型^[40-41]、四波混频模型^[42]等),介质的色散效应使不同的光谱成分必须以不同的角度辐射才能满足相位匹配条件,导致不同辐射角对应不同的光谱成分。当光阑孔径变小时,辐射角度较大的蓝移光谱成分将被阻隔,从而观测到蓝移截止波长变大。本实验结果表明:飞秒激光脉冲在 CaF₂ 晶体中产生的超连续谱的蓝移截止波长为 300 nm;同时,由于飞秒激光成丝时光强钳制效应的限制,蓝移截止波长不再随入射光能量的增加而继续变化。

从上述实验结果可以看到,在一定范围内提高入射激光能量,可以提高超连续谱的强度,直至出现钳制光强现象。进一步提高入射激光能量,晶体可能会被损坏。考虑到 CaF₂ 晶体的非线性光学性质的各向异性,通过改变 CaF₂ 晶轴与驱动激光偏振的相对取向或许可提供一种提高超连续谱强度的方

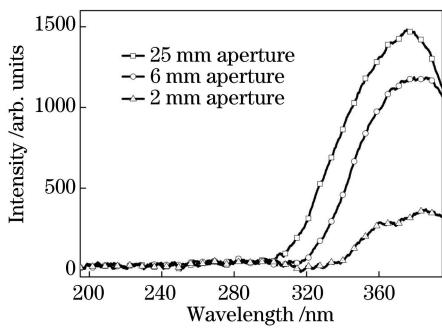


图 3 不同光阑孔径下测得的光谱

Fig. 3 Spectra measured under different aperture sizes

法。同时,材料带隙能量和抽运光子能量的关系可以很好地解释超连续谱带宽范围限制的机理,也就是说,材料的带隙能量最终决定超连续谱的高频端截止频率^[43-44]。通过改变固体的带隙和抽运光子能量调控强场激光电离过程,电离产生的等离子体色散效应决定了所产生的超连续谱的高频截止频率。然而,上述研究都没有关注晶体结构对超连续谱特性的影响。为此,进一步研究不同晶体取向下超连续谱的特性。图 4 所示为当入射激光能量为 5 μJ 时 CaF₂ 晶体在不同取向下产生的超连续谱,其中电场 E 的方向为入射光的偏振方向, α 为入射光偏振方向和 CaF₂ 晶体 [1 0 0] 晶轴的夹角。可以看到,在不同取向下,超连续谱的谱宽不变。但当 $\alpha = 45^\circ$ 时,超连续谱的强度达到最大值。根据自聚焦临界功率公式

$$P_{\text{cr}} = \frac{3.77\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (2)$$

式中: λ_0 为入射激光的波长; n_0 和 n_2 分别为介质的线性折射率和非线性折射率。由(2)式可知,当 $\alpha = 45^\circ$, CaF₂ 晶体的非线性折射系数 n_2 最大^[45], 所需的自聚焦临界功率最低。因此,在相同的入射激光能量下, $\alpha = 45^\circ$ 时所产生的光丝长度最长, 相应地, 超连续谱的强度最大。

4 结 论

对不同条件下强飞秒激光与 CaF₂ 晶体的相互作用产生超连续谱的实验进行分析。在一定入射激光能量范围内, 超连续谱的最大蓝移截止波长保持不变, 并且该最大蓝移截止波长不依赖于晶体取向的变化。这是主要是因为飞秒激光在晶体中成丝时, 产生了光强钳制效应。同时, 本研究还发现, 在相同的入射激光能量下, 利用晶体取向的变化可实现对超连续谱强度的控制。

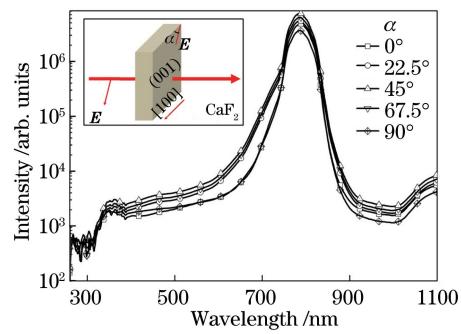


图 4 不同晶体取向下的超连续光谱

Fig. 4 Supercontinuum measured different crystal orientations

参 考 文 献

- [1] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media [J]. Physics Reports, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [2] Braun A, Korn G, Liu X, et al. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air [J]. Optics Letters, 1995, 20(1): 73-75.
- [3] Brodeur A, Chin S L. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1999, 16(4): 637-650.
- [4] Liu W W. Intensity clamping during femtosecond laser filamentation [J]. Chinese Journal of Physics, 2014, 52(1): 465-489.
- [5] Frolov S A, Trunov V I, Leshchenko V E, et al. Multi-octave supercontinuum generation with IR radiation filamentation in transparent solid-state media [J]. Applied Physics B, 2016, 122(5): 124.
- [6] Xu F, Liu J S, Li R X, et al. Nonlinear X-wave formation and conical emission at different powers of a femtosecond laser pulse in water [J]. Optics Communications, 2007, 275(2): 433-439.
- [7] Ionin A A, Seleznev L V, Sunchugasheva E S. Formation of plasma channels in air under filamentation of focused ultrashort laser pulses [J]. Laser Physics, 2015, 25(3): 033001.
- [8] Kasparian J, Rodriguez M, Méjean G, et al. White-light filaments for atmospheric analysis [J]. Science, 2003, 301(5629): 61-64.
- [9] Graydon O. Lightning control by lasers [J]. Nature Photonics, 2009, 3(3): 120-121.
- [10] Henin S, Petit Y, Rohwetter P, et al. Field measurements suggest the mechanism of laser-assisted water condensation [J]. Nature Communications, 2011, 2: 456.
- [11] Ju J J, Liu J S, Wang C, et al. Laser-filamentation-induced condensation and snow formation in a cloud

- chamber[J]. Optics Letters, 2012, 37(7): 1214-1216.
- [12] Zhao J Y, Liu W W, Li S C, et al. Clue to a thorough understanding of terahertz pulse generation by femtosecond laser filamentation [J]. Photonics Research, 2018, 6(4): 296-306.
- [13] D'Amico C, Houard A, Franco M, et al. Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air [J]. Physical Review Letters, 2007, 98(23): 235002.
- [14] Yang Q B, Chen Z P, Yang T, et al. Surface wettability of different micro-textured YG6 processed by femtosecond laser[J]. Laser and Optoelectronics Progress, 2018, 55(9): 091404.
杨奇彪, 陈中培, 杨涛, 等. 飞秒激光加工 YG6 不同微织构表面浸润性研究[J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55(9): 091404.
- [15] Zhang Y J, Song H Y, Liu H Y, et al. Fabrication of millimeter-scaled holes by femtosecond laser filamentation[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(4): 0402012.
张艳杰, 宋海英, 刘海云, 等. 飞秒激光成丝制备毫米级深孔[J]. 中国激光, 2017, 44(4): 0402012.
- [16] Théberge F, Aközbek N, Liu W, et al. Conical emission and induced frequency shift of third-harmonic generation during ultrashort laser filamentation in air [J]. Optics Communications, 2007, 276(2): 298-304.
- [17] Li S Y, Chen A M, Jiang Y F, et al. "Long-lived" luminous effects in femtosecond laser filament [J]. Optics Communications, 2018, 426(2): 105-109.
- [18] Corkum P B, Rolland C, Srinivasanrao-Rao T. Supercontinuum generation in gases [J]. Physics Review Letters, 1986, 57(18): 2268-2271.
- [19] Jimbo T, Caplan V L, Li Q X, et al. Enhancement of ultrafast supercontinuum generation in water by the addition of Zn^{2+} and K^+ cations [J]. Optics Letters, 1987, 17(7): 477-479.
- [20] Alfano R R, Shapiro S L. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass[J]. Physical Review Letters, 1970, 24(11): 584-587.
- [21] Raytchev M, Pandurski E, Buchvarov I, et al. Bichromophoric interactions and time-dependent excited state mixing in pyrene derivatives. A femtosecond broad-band pump-probe study[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2003, 107(23): 4592-4600.
- [22] Baltuška A, Takao F J, Kobayashi T. Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control [J]. Optics Letters, 2002, 27(5): 306-308.
- [23] Tzankov P, Fiebig T, Buchvarov I. Tunable femtosecond pulses in the near-ultraviolet from ultrabroadband parametric amplification[J]. Applied Physics Letters, 2003, 82(4): 517-519.
- [24] Indra L, Batysta F, Hříbek P, et al. Picosecond pulse generated supercontinuum as a stable seed for OPCPA[J]. Optics Letters, 2017, 42(4): 843-846.
- [25] Alfano R R. The supercontinuum laser source[M]. 3rd ed. New York: Springer, 2016.
- [26] Gaeta A L. Catastrophic collapse of ultrashort pulses [J]. Physical Review Letters, 2000, 84(16): 3582-3585.
- [27] Ward H, Bergé L. Temporal shaping of femtosecond solitary pulses in photoionized media [J]. Physical Review Letters, 2003, 90(5): 053901.
- [28] Kandidov V P, Kosareva O G, Golubtsov I S, et al. Self-transformation of a powerful femtosecond laser pulse into a white-light laser pulse in bulk optical media (or supercontinuum generation) [J]. Applied Physics B, 2003, 77(2/3): 149-165.
- [29] Rothenberg J E. Space-time focusing: breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses[J]. Optics Letters, 1992, 17(19): 1340-1342.
- [30] Bloembergen N. The influence of electron plasma formation on superbroadening in light filaments[J]. Optics Communications, 1973, 8(4): 285-288.
- [31] Kolesik M, Katona G, Moloney J V, et al. Theory and simulation of supercontinuum generation in transparent bulk media[J]. Applied Physics B, 2003, 77(2/3): 185-195.
- [32] Huber R, Satzger H, Zinth W, et al. Noncollinear optical parametric amplifiers with output parameters improved by the application of a white light continuum generated in CaF_2 [J]. Optics Communications, 2001, 194(4/5/6): 443-448.
- [33] Tzankov P, Buchvarov I, Fiebig T. Broadband optical parametric amplification in the near UV-VIS [J]. Optics Communications, 2002, 203(1/2): 107-113.
- [34] Buchvarov I, Trifonov A, Fiebig T. Toward an understanding of white-light generation in cubic media: polarization properties across the entire spectral range [J]. Optics Letters, 2007, 32(11): 1539-1541.
- [35] Kartazaev V, Alfano R R. Polarization properties of SC generated in CaF_2 [J]. Optics Communications, 2008, 281(3): 463-468.
- [36] Megerle U, Pugliesi I, Schriever C, et al. Sub-50 fs broadband absorption spectroscopy with tunable excitation: putting the analysis of ultrafast molecular

- dynamics on solid ground [J]. Applied Physics B, 2009, 96(2/3): 215-231.
- [37] Liu W, Petit S, Becker A, *et al*. Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter[J]. Optics Communications, 2002, 202 (1/2/3): 189-197.
- [38] Pogatshnik G J, Hamilton D S. Excited-state photoionization of Ce^+ ions in $\text{Ce}^+ : \text{CaF}_2$ [J]. Physical Review B, 1987, 36(16): 8251-8257.
- [39] Scouler W J, Smakula A. Coloration of pure and doped calcium fluoride crystals at 20 °C and -190 °C [J]. Physical Review, 1960, 120(4): 1154-1161.
- [40] Faccio D, Porras M A, Dubietis A, *et al*. Conical emission, pulse splitting, and X-wave parametric amplification in nonlinear dynamics of ultrashort light pulses[J]. Physical Review Letters, 2006, 96(19): 193901.
- [41] Gong C, Li Z X, Hua L Q, *et al*. Angle-resolved conical emission spectra from filamentation in a solid with an Airy pattern and a Gaussian laser beam[J]. Optics Letters, 2016, 41(18): 4305-4308.
- [42] Luther G G, Wright E M, Newell A C, *et al*. Short-pulse conical emission and spectral broadening in normally dispersive media[J]. Optics Letters, 1994, 19(11): 789-791.
- [43] Nagura C, Suda A, Kawano H, *et al*. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media[J]. Applied Optics, 2002, 41(18): 3735-3742.
- [44] Brodeur A, Chin S L. Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum [J]. Physical Review Letters, 1998, 80(20): 4406-4409.
- [45] DeSalvo R, Sheik-Bahae M, Said A A, *et al*. Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals [J]. Optics Letters, 1993, 18(3): 194-196.