

## 全固态超快激光的非线性脉冲压缩

高梓宸<sup>1,2</sup>, 郭洁<sup>1\*</sup>, 梁晓燕<sup>1\*\*</sup>

<sup>1</sup>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;

<sup>2</sup>中国科学院大学材料与光电研究中心, 北京 100049

**摘要** 非线性脉冲压缩技术是提升高功率全固态超快激光器性能, 获得更短脉宽、更高峰值功率超短脉冲激光的重要手段。非线性脉冲压缩依靠克尔效应引起的自相位调制和之后的啁啾补偿来实现。本文介绍了近年来非线性脉冲压缩方法的研究进展并展望了发展前景。

**关键词** 激光光学; 全固态激光器; 非线性脉冲压缩; 自相位调制

**中图分类号** O437 **文献标志码** A

**doi:** 10.3788/CJL202148.0501007

### 1 引言

基于高功率半导体激光器泵浦的全固态超快激光器具有转换效率高、稳定性好、光束质量好及结构紧凑等优点, 因而在科学研究和工业领域应用广泛, 这些应用的实现主要得益于其较短的脉冲持续时间或者较高的平均功率, 但是这是很难同时实现的。钛宝石激光器自诞生至今一直都是超快激光领域的主力军<sup>[1]</sup>, 受益于很宽的增益带宽, 钛宝石激光系统很容易达到小于 100 fs 的脉冲宽度, 但是其平均功率通常被限制在数瓦的水平; 相反, 基于掺镱(Yb)晶体的激光系统的平均功率可以较为容易地达到 100 W 以上, 甚至千瓦量级<sup>[2-5]</sup>, 但是由于其增益带宽的限制, 在这种功率水平下的脉冲宽度通常只能达到几百飞秒甚至皮秒量级, 为了进一步获得更短的脉冲宽度, 需要对其进行脉冲压缩。

对于本身脉宽就比较窄的激光器, 如基于钛宝石的激光系统, 脉宽就已经可以达到几十飞秒。通过脉冲压缩技术, 可以进一步获得更短脉宽乃至周期量级脉宽的超短超强激光, 这种超短超强的激光可以应用于阿秒科学领域<sup>[6-7]</sup>。而对于高功率的超短脉冲激光器, 如基于掺 Yb 晶体的激光系统, 较窄的增益带宽限制了其可支持激光脉冲的脉宽, 使其

脉宽无法直接压缩至很短的量级, 这就需要先对光谱进行展宽后再进行后续的时域压缩, 将脉冲压窄, 如此可以使脉宽达到 100 fs 以下, 获得脉宽更短的超短脉冲激光。

根据傅里叶变换受限脉冲的时间带宽积理论, 要想进一步压缩脉宽, 首先要对光谱进行展宽。高能量的超短脉冲激光通过非线性介质, 会发生三阶非线性效应, 引起自相位调制从而展宽光谱, 之后通过光栅对或棱镜对等压缩器对展宽后的啁啾脉冲进行色散补偿, 便可将其压缩至更短的脉冲宽度。由此可见, 脉冲压缩是依赖于非线性光谱展宽的, 而不同脉冲压缩方法也主要是依据光谱展宽方法的不同来区分的。

通过介质波导来进行光谱展宽是十分常见的方法。当前较为典型的利用介质波导实现的展宽压缩是通过光子晶体光纤实现的, Jocher 等<sup>[8]</sup>利用该方法产生了 250 W 平均功率、23 fs 脉冲宽度、1  $\mu$ J 脉冲能量的激光脉冲, 此为该方法当前取得较为不错的压缩效果, 但是这种方法存在局限性, 由于自聚焦效应, 介质波导的光谱展宽只能应用于峰值功率低于材料自聚焦阈值功率的激光脉冲, 如果入射激光的峰值功率超过了自聚焦阈值功率, 就会引起自聚焦效应, 造成光学损伤等不利后果。所以这种方法

收稿日期: 2020-11-10; 修回日期: 2020-12-27; 录用日期: 2021-01-27

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFB0405202)

\* E-mail: gracejie123@siom.ac.cn; \*\* E-mail: liangxy@mail.siom.ac.cn

只能对数  $\mu\text{J}$  脉冲能量的超短脉冲激光进行光谱展宽,而无法应用于更高能量的超快激光。

为了对更高能量的激光脉冲进行光谱展宽,通常采用充惰性气体的毛细管,因为惰性气体的自聚焦阈值功率要远远大于介质材料的阈值功率,所以可以对更高峰值功率的激光进行光谱展宽和脉冲压缩,当前已产生了  $408\text{ W}/30\text{ fs}/320\text{ }\mu\text{J}$  的压缩脉冲,如果通过二级压缩,可以实现  $216\text{ W}/6.3\text{ fs}/170\text{ }\mu\text{J}$  的压缩脉冲<sup>[9]</sup>。这种采取充惰性气体的毛细管的方法可以实现对几百  $\mu\text{J}$  脉冲能量的超短脉冲激光的压缩,但是由于惰性气体较小的非线性效应和毛细管尺寸的限制,该方法无法对脉冲能量在  $100\text{ }\mu\text{J}$  以下的激光进行光谱展宽。

以上两种采取介质波导的方法很难对脉冲能量在  $1\sim 100\text{ }\mu\text{J}$  量级的超短脉冲激光进行有效的光谱展宽和脉冲压缩。为了对  $1\sim 100\text{ }\mu\text{J}$  的超短脉冲激光的光谱进行展宽,可以采用充气(惰性气体)空芯光纤的方法,该方法于 1996 年由 Nisoli 等提出,将  $140\text{ fs}/660\text{ }\mu\text{J}$  的脉冲压缩到  $10\text{ fs}/240\text{ }\mu\text{J}$ <sup>[10]</sup>。空芯光纤有更小的尺寸,长度更长,且没有太大的损耗<sup>[11]</sup>。当前已实现  $76\text{ W}/31\text{ fs}/7\text{ }\mu\text{J}$  的压缩脉冲<sup>[12]</sup>。另外还可以采用对波导中的脉冲进行分割的方式,当前已产生了  $0.75\text{ W}/71\text{ fs}/7.5\text{ }\mu\text{J}$  的压缩脉冲<sup>[13]</sup>。但是基于介质波导的脉冲压缩方法受限于介质波导尺寸,在更高能量的超短脉冲激光进入时很容易引发强烈的非线性效应,所以无波导的方案对更高能量的超短脉冲激光的压缩更为有利。

其实在使用介质波导进行展宽光谱之前,人们就考虑利用块状介质材料进行展宽光谱了<sup>[14-16]</sup>。它可以脱离波导结构,从而在自由空间里传播实现光谱展宽,这种不需要将光耦合进波导结构的方法实现起来更容易,最开始高能量飞秒脉冲的压缩就是使用块状玻璃来展宽光谱的,实现了将  $100\text{ }\mu\text{J}$  量级激光脉冲从  $100\text{ fs}$  压缩到  $20\text{ fs}$ <sup>[17]</sup>,但是这种直接采取块状材料的展宽方法是较为粗糙的,实际操作中需要更为严格地控制能量。如果入射激光的峰值功率接近自聚焦阈值而且时有波动时,需要多次移动材料,以更新其上未被损伤的点,另外得到的展宽光谱空间啁啾现象较为严重,这就需要对这种基于介质材料的无需波导的展宽方法进行创新。

Lu 等<sup>[18]</sup>采取了一种使用多个熔融石英薄片作为展宽介质的光谱展宽方法,这种薄片形式的介质材料相比块状介质材料具有更小的不良非线性效

应,可以得到更好的光谱展宽效果。通过这种多薄片的方法得到了波长为  $450\sim 980\text{ nm}$  的超连续谱输出,并在后来将  $7\text{ fs}$  压缩到  $3.7\text{ fs}$ <sup>[19]</sup>,实现了对已经很短的超短脉冲激光进一步的压缩,得到了周期量级的超短脉冲激光。不过由于其峰值功率过高,光谱展宽并不均匀,并且效率不高,所以这种方法对于希望进一步压缩到极短脉冲宽度的超快激光器来说,如钛宝石激光器,是一个易于操作的好方法,但是现有的文献报道中其效率并不高,部分能量以锥形辐射的形式出现,因此其空间模式会出现环状结构<sup>[18]</sup>。作者认为出现该现象的主要原因可能在于,对于多个薄片在具体放置的位置关系及入射其上的峰值功率控制方面,尚没有形成很好的理论指导,现有文献的操作主要是唯象地使展宽后的光谱宽度达到最大。

为了实现对高功率超短脉冲激光进行压缩时既能压缩到很窄的脉宽,又可以具有较高的效率,这需要光谱展宽具有较好的均匀性,可以采用 multi-pass-cell(MPC)方法,即通过两个反射镜让光在腔内来回反射,多次通过非线性介质进行展宽,通过控制每次展宽的非线性相移在一个很小的量级,实现了十分均匀的展宽。该方法在实现较好脉冲压缩的同时保证了激光能量没有太大损失<sup>[20-22]</sup>。

如果要想对高功率的超短脉冲激光进行进一步压缩,得到周期量级的超短脉冲激光,可以采用两级压缩的方式,如此可以突破单一方法压缩的极限,通过先用 MPC 方法进行压缩再用毛细管进行再压缩后,实现了将  $330\text{ fs}$  压缩到  $6.8\text{ fs}$ <sup>[23]</sup>。

当前激光在朝着超短超强的方向不断发展,这就需要脉冲压缩方法的不断进步,不仅需要脉冲压缩方法适用于更高能量的场合,还需在保证转换效率的前提下实现更高的压缩比、更小的脉宽。本文主要对超快激光的光谱展宽和脉冲压缩进行介绍,对当前近几年实现的各种脉冲压缩方法进行分析与讨论,并对未来脉冲压缩的方向进行展望。

## 2 光谱展宽和脉冲压缩的基本原理

### 2.1 光谱宽度与脉冲宽度的关系

一般来说,光脉冲宽度  $\tau$  的定义为光脉冲强度分布的  $1/2$  最大值处的半峰全宽(FWHM),光脉冲的光谱宽度  $\Delta\omega$  一般定义为光谱强度分布的 FWHM。因为通过傅里叶变换,光脉冲电场的时间特性与光谱特性是彼此相关的,所以要想使光脉冲的脉冲宽度发生变化,光谱宽度就要发生变化,脉冲

宽度  $\tau$  与其傅里叶变换光谱宽度  $\Delta\nu$  ( $\Delta\nu = \Delta\omega/2\pi$ ) 之间的关系为

$$\tau \times \Delta\nu \geq \kappa, \quad (1)$$

式中:  $\kappa$  为时间带宽积常数。所以,若激光脉冲已经达到当前光谱宽度下的最窄脉宽之后,要想继续将脉冲宽度压窄,需要先对其光谱进行展宽。超快激光与非线性介质作用发生非线性效应,引起自相位调制,自相位调制导致激光光谱发生展宽,之后通过对啁啾脉冲进行色散补偿,把脉冲压缩到傅里叶变换受限脉冲宽度,如此就实现了脉冲宽度的压缩。由此可知,脉冲压缩是依赖于光谱展宽的,近些年来脉冲压缩方法的创新也往往是从光谱展宽方法的创新入手的。

## 2.2 光谱展宽

高强度的飞秒激光脉冲在透明介质中传输时,激光脉冲会诱导介质电极化,引起非线性效应:

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E \cdot E + \epsilon_0 \chi^{(3)} E \cdot E \cdot E + \dots, \quad (2)$$

式中:  $P$  为极化强度;  $\epsilon_0$  为真空介电常数;  $\chi^{(m)}$  为  $m$  阶极化率张量大小;  $E$  为光电场强度。其中三阶非线性效应会引起克尔效应,导致折射率  $n$  随光强变化而发生变化,即

$$n = n_0 + n_2 I(t), \quad (3)$$

式中:  $n_0$  为线性介质折射率;  $n_2$  为非线性折射率;  $I(t)$  为光强。克尔效应会引起自相位调制。克尔效应相应的电子非线性响应时间为飞秒量级,可视为瞬时非线性,波动方程为

$$\frac{\partial}{\partial z} \bar{E}(z, t) = i \frac{n_2 k_l}{n_0} |\bar{E}|^2 \bar{E}, \quad (4)$$

式中:  $k_l$  为波数。考虑到  $\chi^{(3)}$  是实数,将  $\bar{E} = A \exp(-i\varphi)$  代入(4)式,并将实部与虚部分离,得到脉冲的包络方程和相位方程,分别为

$$\frac{\partial}{\partial z} A = 0, \quad (5)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \varphi = -\frac{n_2 k_l}{n_0} A^2, \quad (6)$$

式中:在以群速度传播的坐标系中,脉冲振幅  $A$  是常数,即脉冲包络不变。则对(6)式进行积分,可得自相位调制产生的非线性相移:

$$\varphi(t, z) = \varphi_0(t) - \frac{n_2 k_l}{n_0} A_0^2(t) z. \quad (7)$$

由此可得出频率的变化率,即频率的瞬时增量为

$$\delta\omega(t) = \frac{\partial \Delta\varphi}{\partial t} = -\frac{n_2 k_l}{n_0} \times \frac{A_0^2(t)}{dt} z. \quad (8)$$

由(8)式可以看出,光谱在自相位调制之后获得了新的频率成分。折射率随光脉冲强度变化瞬时变化,脉冲不同部分的折射率因光脉冲强度不同而不同,进而导致相位沿整个脉冲变化。最终自相位调制产生了新的频率成分,展宽了脉冲光谱<sup>[24-25]</sup>。

## 2.3 脉冲压缩

自相位调制引起光谱展宽,同时使得脉冲成为啁啾脉冲,即脉冲包络的不同部位具有不同的瞬时频率,往往会使脉冲前沿具有负啁啾,脉冲后沿具有正啁啾。通过补偿色散,啁啾脉冲的脉冲宽度发生变化。群速度色散与啁啾脉冲的关系为

$$G_{\text{GVD}} \equiv \frac{d\left(\frac{1}{v_g}\right)}{d\omega} = -\frac{1}{v_g} \frac{a_g}{c(t)}, \quad (9)$$

式中:  $G_{\text{GVD}}$  为群速度色散;  $c(t)$  为啁啾特性;  $a_g$  为群加速度;  $v_g$  为群速度;  $v_g$  为频率特性。对于自相位调制产生前沿具有负啁啾、脉冲后沿具有正啁啾的啁啾脉冲,通过补偿负群速度色散,脉冲前沿跑得慢,脉冲后沿跑得快,从而可以实现脉冲压缩。可以产生负群速度色散的光学元件主要有光栅对、棱镜对和啁啾镜等。

## 3 光谱展宽的主要方法

脉冲压缩的主要步骤是先将脉冲的光谱展宽到能够支持所需脉冲宽度的谱宽,然后通过对啁啾脉冲补偿色散,压缩得到更窄的脉冲宽度。当前已有的脉冲压缩方法有很多种,它们之间主要通过不同的展宽方法来进行区分,而光谱展宽方法的选择主要与用于展宽的非线性介质有关。

最早的高能量飞秒激光脉冲压缩是利用电介质材料进行的,其中最突出的介质材料是熔融石英。Rolland 等<sup>[17]</sup>在 1988 年利用块状玻璃展宽了激光光谱,将 100  $\mu\text{J}$  量级的飞秒激光从 100 fs 压缩到了 20 fs。Mével 等<sup>[26]</sup>在 2003 年利用块状电介质材料,实现了将 42 fs/480  $\mu\text{J}$  的脉冲压缩到 14 fs/220  $\mu\text{J}$ ,图 1 为此次实验的装置示意图。该实验直接采用电介质材料进行展宽,然后压缩脉冲,得到较为不错的压缩效果。但是从图 2 可以看出,基于块状电介质材料的脉冲压缩方法展宽的光谱的空间啁啾现象严重,且效率不高,激光功率在经过光谱展宽和脉冲压缩后下降很多。

由于电介质材料的自聚焦阈值很小,所以对峰值功率很高的超短脉冲激光进行光谱展宽时会引发

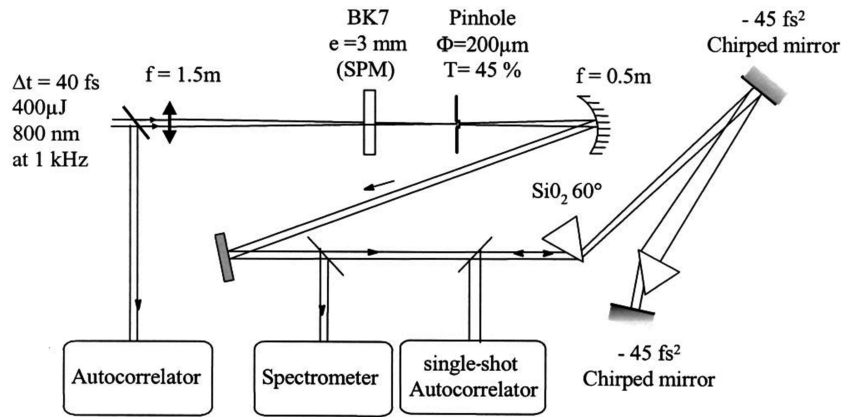


图 1 光谱展宽实验装置示意图<sup>[26]</sup>

Fig. 1 Schematic of experimental setup for spectral broadening<sup>[26]</sup>

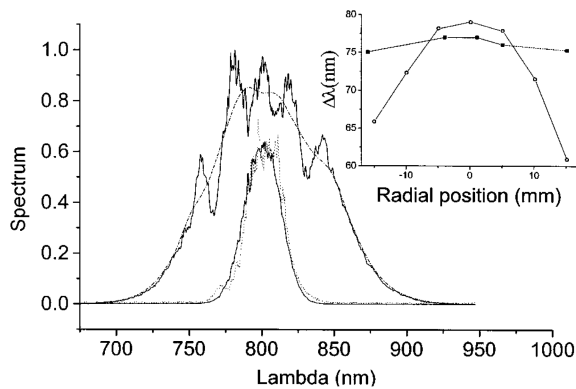


图 2 输入脉冲在空气中聚焦前和聚焦后的频谱<sup>[26]</sup>

Fig. 2 Frequency spectra of input pulse before and after focalization in air<sup>[26]</sup>

自聚焦,造成成丝效应、光学损伤等不利结果<sup>[27]</sup>。然而由于脉冲压缩后峰值功率很可能显著增加,使用电介质材料进行脉冲压缩时很难完全避免这些不利现象,这也是直接采用电介质材料进行脉冲压缩所得到的效果并不是十分理想的原因,所以有些研究团队选取其他类型的非线性介质作为展宽介质,

比如惰性气体。

惰性气体的自聚焦阈值要远远大于电介质材料的阈值功率,这是由于惰性气体的非线性折射率很小,而自聚焦阈值功率的表达式为  $P_{cr} = 3.77\lambda_2 / 8\pi n_0 n_2$ , 所以其自聚焦阈值功率要远大于电介质材料。对于近红外波段的飞秒脉冲而言,惰性气体的自聚焦阈值功率在 10 GW 量级,而由于较大的非线性效应,熔融石英等介质的自聚焦阈值功率在数 MW 量级<sup>[28]</sup>。

如果非线性介质选用惰性气体,则需要通过波导结构作为载体。基于充惰性气体的空芯光纤的压缩方法是一种常见且十分有效的对高峰值功率激光脉冲进行压缩的方法。这种方法最早是由 Nisoli 等在 1996 年提出的,克服了块状材料压缩的空间啁啾严重、光斑不均匀的问题,而且在当时空芯波导理论已经十分成熟。该方法在 2014 年实现了将 740 fs 的激光脉冲压缩到了 88 fs<sup>[29]</sup>,图 3 即此实验通过充  $1.3 \times 10^3$  kPa 的氩气在空芯光纤中进行脉冲压缩的实验装置示意图。

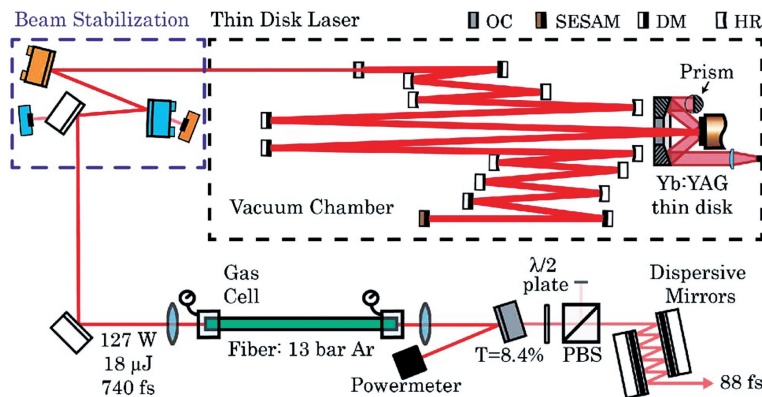


图 3 充气空芯光纤脉冲压缩的实验装置<sup>[29]</sup>

Fig. 3 Experimental setup for pulse compression by gas-filled hollow-core fiber<sup>[29]</sup>

虽然充气空芯光纤的方法取得了不错的脉冲压缩效果,而且相对于普通的光纤压缩,充惰性气体的光纤可以应用于相对更高能量的激光脉冲压缩<sup>[30]</sup>,但是由于其波导结构的本质,芯径无法太大,依然极易引起强烈的非线性效应。而对于本身脉冲宽度就已经很窄的超快激光器,它们的脉冲宽度有时只有几十 fs,所以若使用充气空芯光纤的方法对这种超短脉冲激光进行进一步脉冲压缩时,很容易引发不良的非线性效应,造成不可逆转的损伤,所以该方法对入射激光能量有着极大的限制,大大地制约了该方法的应用范围,这就促使研究人员寻找其他可以突破这一限制的方法。

因此, Lu 等<sup>[18]</sup> 在 2014 年提出了另一种应用熔融石英这种电介质材料的新方法。该方法区别于直接利用块状介质材料进行光谱展宽的方法,它们利用仅有 0.1 mm 厚度的熔融石英薄片,通过巧妙设计薄片的摆放位置,实现了对极高峰值功率超短脉冲激光的光谱展宽,如图 4 所示。这种基于薄片材料的方法不仅克服了块状石英材料直接应用时的不足,而且因非波导结构,克服了入射激光能量的限制,相比于充惰性气体的空芯光纤,该方法突破了能量限制,可以应用于更高峰值功率的超短脉冲激光,并最终实现了将超短激光脉冲压缩至周期量级。

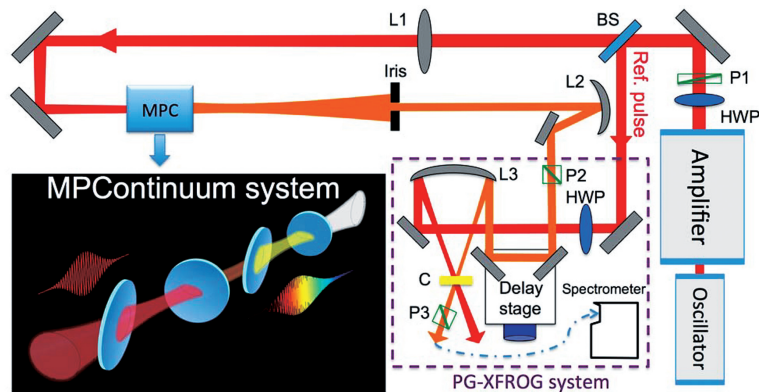


图 4 多薄片展宽实验装置示意图<sup>[18]</sup>

Fig. 4 Schematic of experimental setup for spectral broadening of multiple-plates<sup>[18]</sup>

基于多薄片材料的光谱展宽方法的物理原理是当很高峰值功率的飞秒激光入射到熔融石英介质之后,先发生光谱展宽,后发生脉冲分裂或光学击穿等现象<sup>[31-32]</sup>。这也就意味着在时间和空间上存在一个窗口,在这个窗口中,光谱展宽已经开始但是脉冲仍然完好无损。通过限制熔融石英薄片的厚度,这种高功率的光在介质中只进行自相位调制,从而发生光谱展宽,在发生成丝现象和光学损伤之前离开熔融石英介质。而且研究发现,这种脉冲在空气中传播的自愈机制<sup>[33]</sup>,即当激光脉冲离开介质之后,在介质中积累的非线性相位会使脉冲在空间上重新聚集,时间上重新压缩,脉冲强度会得到恢复。这也是通过这种连续介质首次实现与通过气体介质压缩得到的结果相仿的压缩效果<sup>[34]</sup>,他们利用这种多薄片的方法对极高峰值功率(5.6 GW)的飞秒激光进行压缩,得到了 450~980 nm 的超连续谱,效率为 54%。该研究团队在 2016 年从理论上对该方法进行了分析与计算<sup>[35]</sup>,并在 2018 年得到了小于 4 fs 的周期量级的激光脉冲输出<sup>[19]</sup>。

还有其他研究团队也开展了利用多薄片的方法

进行脉冲压缩的研究。He 等<sup>[36-37]</sup> 通过 7 个熔融石英薄片实现了 460~950 nm 超连续谱的输出,并最终得到了脉冲宽度为 5.4 fs、脉冲能量为 0.68 μJ 的超短激光脉冲,该脉冲宽度相当于两个光周期,意味着该脉冲具有 0.13 TW 的峰值功率,图 5 为应用 7 片熔融石英薄片进行脉冲压缩的实验装置示意图。Budriūnas 等<sup>[38]</sup> 也利用多薄片的方法产生了超连续谱。

虽然利用多薄片的方法可以实现将几十 fs 的超短脉冲激光进一步光谱展宽和脉冲压缩,乃至周期量级,但是光谱展宽的均匀性不好,效率较低,导致能量大量损失,因此该方法对峰值功率方面的提升效果并不十分理想, Schulte 等在 2016 年提出了一种基于 MPC 的新方法<sup>[39]</sup>。该方法设计了一个 MPC 腔,使激光在里面来回反射,反复经过非线性介质,在每一步中只有很小的非线性相位,如图 6 所示,如此可以实现光谱十分均匀的展宽,保证了光谱展宽和脉冲压缩过程中较高的转换效率,对峰值功率的提升效果更为理想。他们首先采取了熔融石英介质,使光在腔中走 58 通,平均每通过非线性介质

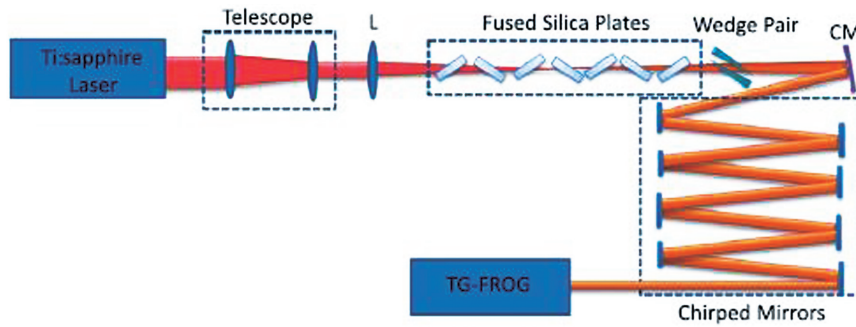


图 5 在熔融石英薄片产生超连续谱和脉冲压缩的实验装置图<sup>[36]</sup>

Fig. 5 Experimental setup for supercontinuum spectrum generation in fused silica plates and pulse compression<sup>[36]</sup>

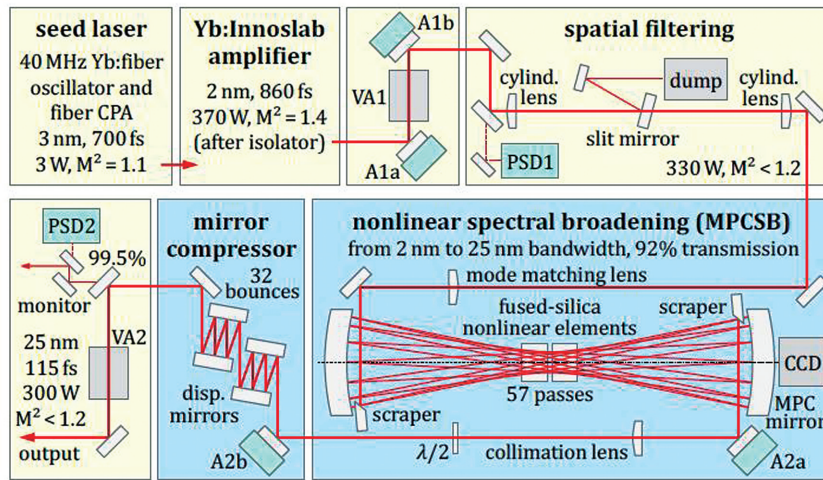


图 6 非线性脉冲压缩装置的结构图<sup>[39]</sup>

Fig. 6 Sketch of the setup for nonlinear pulse compression<sup>[39]</sup>

一次会产生  $0.07\pi$  的非线性相移, 总共产生了  $4\pi$  的非线性相移, 将光谱从 2 nm 展宽到了 24.8 nm, 而且展宽十分均匀, 最终将峰值功率为 6.5 MW、平均功率为 330 W 的飞秒激光从 860 fs 压缩到了 115 fs, 功率为 300 W, 能量转换效率超过了 90%,

实验结果如图 7 所示。这种方法也有不足之处, 光在 MPC 腔中走 58 通, 其中经非线性介质的光路长为 1.37 m, 自由传播的光路长 30.8 m, 光路过长会导致指向性发生波动、引入延迟<sup>[40]</sup>, 这就需要十分精确的光路设计和实验条件。

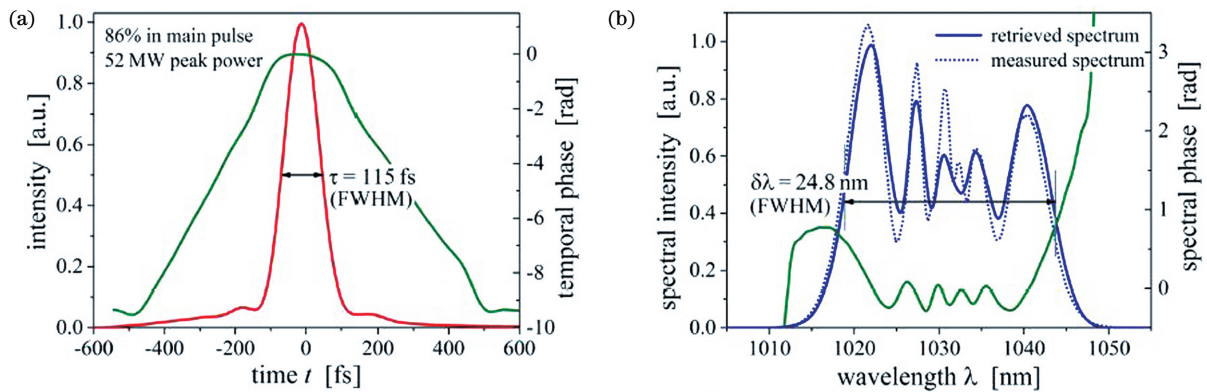


图 7 压缩脉冲的实验结果<sup>[40]</sup>。(a)从频率分辨光学开关(FROG)中测得的时域脉冲形状和相位;(b)用 FROG 测得的光谱和相位,光谱分析仪测量得到的光谱

Fig. 7 Experimental results of compressed pulses<sup>[40]</sup>. (a) Temporal pulse shape and phase retrieved from FROG measurement; (b)spectrum and phase retrieved from FROG measurement and spectrum measured by optical spectrum analyzer

但是由于熔融石英材料的自聚焦阈值太小,在使用熔融石英作为 MPC 腔中的展宽介质时,是无法对很高峰值功率的超短脉冲激光进行光谱展宽和脉冲压缩的。然而如果要想进一步压缩到几十 fs 甚至几 fs 的脉宽,峰值功率必然会达到很高的水平,而熔融石英作为展宽介质是很难承受这么高峰值功率的,这制约了 MPC 方法压缩脉冲至更短的脉宽。所以要想应用该方法对高功率的超短脉冲激光进行进一步压缩脉宽,就需要可以对更高峰值功率入射激光进行展宽的展宽介质。因此该团队在 2019 年将非线性介质由熔融石英材料换成了惰性气体氩气,通过设计不同的腔型和改变氩气在腔中的气压,如图 8 所示,在 44 通、400 kPa 的条件下将光谱从 2.5 nm 展宽到 96 nm,实现了将 590 fs、平均功率高达 530 W 的激光脉冲压缩到了 30 fs;在 58 通、350 kPa 的条件下,将光谱展宽到了 112 nm,实现了将 590 fs、530 W 的激光压缩到了 26.5 fs<sup>[41]</sup>。

此外,也有其他团队对这种充惰性气体的 MPC 方法开展了相关的研究工作。Lavenu 等<sup>[42]</sup>将 275 fs/160 μJ 的激光压缩到 33 fs/135 μJ。Kaumanns 等<sup>[43]</sup>将 1.3 ps/18 mJ 的高功率超短脉冲激光压缩到 39 fs,压缩比为 33,图 9 为此次实验的示意图,这

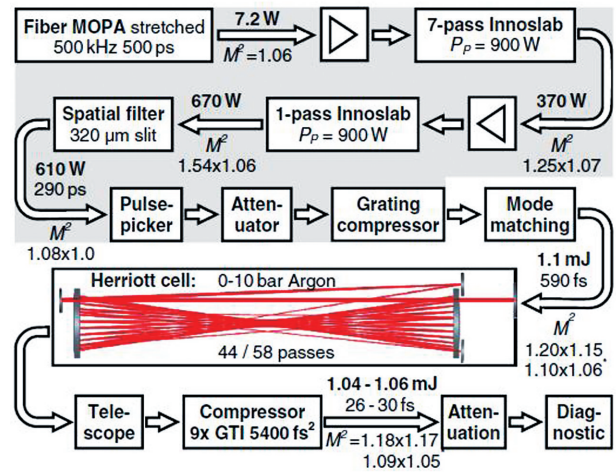


图 8 带有激光系统(阴影)的实验设置和选择的光束/脉冲参数<sup>[41]</sup>

Fig. 8 Experimental setup with laser system (shaded region) and selected beam/pulse parameters<sup>[41]</sup>

也是非线性脉冲压缩方法目前所实现的最高脉冲能量激光的脉冲压缩,未来研究人员将尝试此方法,继续提高脉冲压缩技术可应用的能量范围,实现对百毫焦级的超短脉冲激光压缩<sup>[44]</sup>。这些足以说明,充惰性气体的 MPC 方法可以在保证效率的前提下,将高能量超短脉冲激光的脉宽压缩至几十 fs 量级甚至更短。

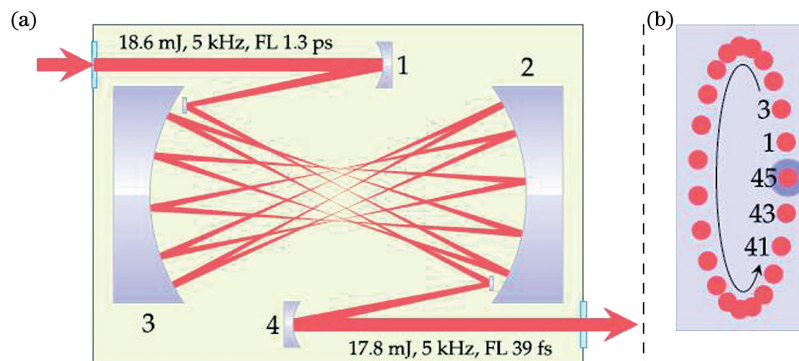


图 9 脉冲压缩实验装置图<sup>[43]</sup>。(a)MPC 实验装置示意图;(b)镜子 2 上的光束图象

Fig. 9 Experimental setup for pulse compression<sup>[43]</sup>. (a) Schematic of the MPC setup; (b) beam pattern on mirror 2

当一种脉冲压缩方法所实现的脉宽压缩效果到达瓶颈时,采取多级压缩也是进一步压缩脉冲宽度、提升峰值功率的有效方法。Tsai 等<sup>[45]</sup>在 2019 年通过将 MPC 方法和多薄片结合,采用二级压缩的方式,如图 10 所示,先将薄片振荡器产生的重复频率为 13.6 MHz,平均功率为 123 W,峰值功率为 16 MW,脉宽为 534 fs 的脉冲通过 MPC 系统,得到了脉冲宽度为 88 fs,平均功率为 112 W 的脉冲;然后再通过多薄片系统,最终得

到脉冲宽度为 27 fs,平均功率为 98 W,效率为 80% 的脉冲,该方法极大地压缩了脉宽,同时也将峰值功率提升到 166 MW。该方法有望可以进一步压缩脉冲至周期量级,从而应用于高重频、高平均功率的振荡器,驱动高次谐波产生十分宽带的太赫兹辐射。

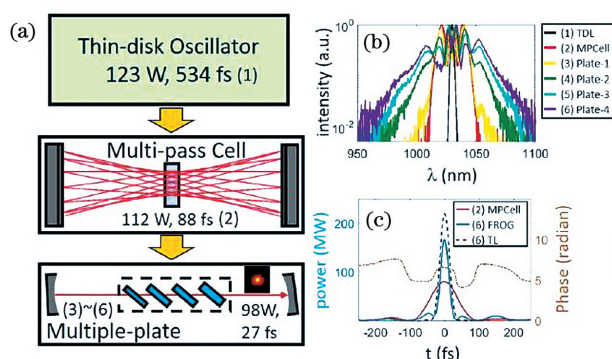


图 10 脉冲压缩实验装置及实验结果<sup>[45]</sup>。(a)展宽实验装置图;(b)按图 10(a)标记测量所得的功率谱;

(c)功率谱和相位谱

Fig. 10 Experimental setup for pulse compression and experimental results<sup>[45]</sup>. (a) Experimental setup for spectral broadening; (b) power spectra measured along the setup as labelled in Fig.10(a); (c) power spectra and phase spectra

## 4 总结与展望

非线性脉冲压缩技术是当前超快激光领域的研究热点之一。近年来,基于各种不同特性的非线性介质结合各种创新性的光谱展宽和脉冲压缩方法,使非线性脉冲压缩方法可以应用于更高能量激光的脉冲压缩,可以将激光脉冲压缩至更短的脉冲宽度、得到更好的压缩效果。基于充气空芯光纤的非线性脉冲压缩方法现在仍是获得周期量级高能脉冲的主要方法,虽然波导结构限制了入射激光的能量,但是在其可应用的范围内能够获得很宽的光谱,将激光脉冲压缩至很窄。基于多个熔融石英薄片的非线性脉冲压缩方法是近年来出现的另一种获得周期量级脉宽激光的方法,其克服了波导结构的限制,可以对更高能量的超快激光进行脉冲压缩,能够获得数飞秒的周期量级激光。虽然该方法可以将脉宽压缩至极短,但是效率不高,总体的峰值功率提升效果不是十分理想。而基于熔融石英介质的 MPC 方法是一种很好的、适用范围较广的脉冲压缩方法,其可以实现对光谱的均匀展宽,减少光谱展宽和脉冲压缩过程中能量的损耗。而基于惰性气体的 MPC 方法在此基础上发展,既能保持高能的特点,又可以得到很好的压缩效果,峰值功率提升效果显著。这种采用 MPC 结构的方法当前可以实现对十几毫焦的高能量超短脉冲激光进行压缩,未来随着技术的不断发展,实现对百毫焦量级的超短脉冲激光的压缩是十分可能的。此外,将不同的脉冲压缩方法结合,二

级压缩的综合式脉冲压缩方法是突破当前脉冲压缩瓶颈、获得更短脉宽激光的有效途径。未来,脉冲压缩技术也将会朝着这两个方向发展,即可以实现对更高能量的超短脉冲激光进行压缩,获得更短的脉冲宽度,实现更好的压缩效果,从而得到更高峰值功率的超短脉冲激光。

## 参 考 文 献

- [1] Li W, Gan Z, Yu L, et al. 339 J high-energy Ti:sapphire chirped-pulse amplifier for 10 PW laser facility[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(22): 5681-5684.
- [2] Russbuedt P, Mans T, Weitenberg J, et al. Compact diode-pumped 1.1 kW Yb:YAG innoslab femtosecond amplifier[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(24): 4169-4171.
- [3] Saraceno C J, Emaury F, Schriber C, et al. Toward millijoule-level high-power ultrafast thin-disk oscillators[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2015, 21(1): 106-123.
- [4] Müller M, Kienel M, Klenke A, et al. 1 kW 1 mJ eight-channel ultrafast fiber laser[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(15): 3439-3442.
- [5] Saraceno C J, Emaury F, Heckl O H, et al. 275 W average output power from a femtosecond thin disk oscillator operated in a vacuum environment [J]. *Optics Express*, 2012, 20(21): 23535-23541.
- [6] Couairon A, Lotti A, Faccio D, et al. Generation of high harmonics and attosecond pulses with ultrashort laser pulse filaments and conical waves[J]. *Pramana*, 2014, 83(2): 221-230.
- [7] Hädrich S, Carstens H, Rothhardt J, et al. Multi-gigawatt ultrashort pulses at high repetition rate and average power from two-stage nonlinear compression [J]. *Optics Express*, 2011, 19(8): 7546-7552.
- [8] Jocher C, Eidam T, Hädrich S, et al. Sub 25 fs pulses from solid-core nonlinear compression stage at 250 W of average power[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(21): 4407-4409.
- [9] Hädrich S, Kienel M, Müller M, et al. Energetic sub-2-cycle laser with 216 W average power [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(18): 4332-4335.
- [10] Nisoli M, De Silveshi S, Svelto O. Generation of high-energy 10-fs pulses by a new pulse compression technology[C]//Conference on Lasers and Electro-Optics, June 2-7, 1996, Anaheim, California. Washington, D.C.: OSA, 1996: CTuR5.
- [11] Travers J C, Chang W, Nold J, et al. Ultrafast nonlinear optics in gas-filled hollow-core photonic crystal fibers [J]. *Journal of the Optical Society of*



- America B, 2011, 28(12): A11-A26.
- [12] Hädrich S, Krebs M, Hoffmann A, et al. Exploring new avenues in high repetition rate table-top coherent extreme ultraviolet sources [J]. *Light: Science & Applications*, 2015, 4(8): e320.
- [13] Guichard F, Zaouter Y, Hanna M, et al. Energy scaling of a nonlinear compression setup using passive coherent combining [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(21): 4437-4440.
- [14] Seidel M, Arisholm G, Brons J, et al. All solid-state spectral broadening: an average and peak power scalable method for compression of ultrashort pulses [J]. *Optics Express*, 2016, 24(9): 9412-9428.
- [15] Seidel M, Brons J, Arisholm G, et al. Efficient high-power ultrashort pulse compression in self-defocusing bulk media [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 1410.
- [16] Bache M, Bang O, Krolikowski W, et al. Limits to compression with cascaded quadratic soliton compressors [J]. *Optics Express*, 2008, 16(5): 3273-3287.
- [17] Rolland C, Corkum P B. Compression of high-power optical pulses [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1988, 5(3): 641-647.
- [18] Lu C H, Tsou Y J, Chen H Y, et al. Generation of intense supercontinuum in condensed media [J]. *Optica*, 2014, 1(6): 400-406.
- [19] Lu C H, Witting T, Husakou A, et al. Sub-4 fs laser pulses at high average power and high repetition rate from an all-solid-state setup [J]. *Optics Express*, 2018, 26(7): 8941-8956.
- [20] Hanna M, Délen X, Lavenu L, et al. Nonlinear temporal compression in multipass cells: theory [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2017, 34(7): 1340-1347.
- [21] Ueffing M, Reiger S, Kaumanns M, et al. Nonlinear pulse compression in a gas-filled multipass cell [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(9): 2070-2073.
- [22] Chambinaud A, Pouysegur J, Cormier M, et al. Nonlinear compression of a 100 W amplifier to sub-50 fs [C] // *Laser Congress 2019 (ASSL, LAC, LS&C)*, September 29-October 3, 2019, Vienna, Austria. Washington, D.C.: OSA, 2019: ATh1A.1.
- [23] Lavenu L, Natile M, Guichard F, et al. High-power two-cycle ultrafast source based on hybrid nonlinear compression [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 1958-1967.
- [24] Shi S X, Chen G F, Zhao W, et al. *Nonlinear optics* [M]. 2nd ed. Xi'an: Xidian University Press, 2012: 430-432.  
石顺祥, 陈国夫, 赵卫, 等. *非线性光学* [M]. 2 版. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2012: 430-432.
- [25] Zhang Z G. *Femtosecond laser technology* [M]. 2nd ed. Beijing: Science Press, 2017.  
张志刚. *飞秒激光技术* [M]. 2 版. 北京: 科学出版社, 2017.
- [26] Mével E, Tcherbakoff O, Salin F, et al. Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pulses [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2003, 20(1): 105-108.
- [27] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media [J]. *Physics Reports*, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [28] Brodeur A, Chin S L. Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum [J]. *Physical Review Letters*, 1998, 80(20): 4406-4409.
- [29] Emaury F, Saraceno C J, Debord B, et al. Efficient spectral broadening in the 100-W average power regime using gas-filled kagome HC-PCF and pulse compression [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(24): 6843-6846.
- [30] Gebhardt M, Gaida C, Stutzki F, et al. High average power nonlinear compression to 4 GW, sub-50 fs pulses at 2  $\mu\text{m}$  wavelength [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(4): 747-750.
- [31] Nguyen N T, Saliminia A, Liu W, et al. Optical breakdown versus filamentation in fused silica by use of femtosecond infrared laser pulses [J]. *Optics Letters*, 2003, 28(17): 1591-1593.
- [32] Kretschmar M, Brée C, Nagy T, et al. Direct observation of pulse dynamics and self-compression along a femtosecond filament [J]. *Optics Express*, 2014, 22(19): 22905-22916.
- [33] Bergé L, Skupin S, Steinmeyer G. Temporal self-restoration of compressed optical filaments [J]. *Physical Review Letters*, 2008, 101(21): 213901.
- [34] Bohman S, Suda A, Kanai T, et al. Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1 kHz using hollow-fiber pulse compression [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(11): 1887-1889.
- [35] Cheng Y C, Lu C H, Lin Y Y, et al. Supercontinuum generation in a multi-plate medium [J]. *Optics Express*, 2016, 24(7): 7224-7231.
- [36] He P, Liu Y Y, Zhao K, et al. High-efficiency supercontinuum generation in solid thin plates at 0.1 TW level [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(3): 474-477.
- [37] Zhao K, Xu S Y, Jiang Y J, et al. Research progress on octave supercontinuum generation in solid medium [J]. *Acta Physica Sinica*, 2018, 67(12): 124203.  
赵昆, 许思源, 江昱佼, 等. 基于固体介质的倍频程连续光谱产生的研究进展 [J]. *物理学报*, 2018, 67

- (12): 124203.
- [38] Budriūnas R, Kučinskas D, Varanavičius A. High-energy continuum generation in an array of thin plates pumped by tunable femtosecond IR pulses [J]. *Applied Physics B*, 2017, 123(7): 212.
- [39] Schulte J, Sartorius T, Weitenberg J, et al. Nonlinear pulse compression in a multi-pass cell [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(19): 4511-4514.
- [40] Weitenberg J, Vernaleken A, Schulte J, et al. Multi-pass-cell-based nonlinear pulse compression to 115 fs at 7.5  $\mu\text{J}$  pulse energy and 300 W average power [J]. *Optics Express*, 2017, 25(17): 20502-20510.
- [41] Russbuedt P, Weitenberg J, Schulte J, et al. Scalable 30 fs laser source with 530 W average power [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(21): 5222-5225.
- [42] Lavenu L, Natile M, Guichard F, et al. Nonlinear pulse compression based on a gas-filled multipass cell [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(10): 2252-2255.
- [43] Kaumanns M, Pervak V, Kormin D, et al. Multipass spectral broadening of 18 mJ pulses compressible from 1.3 ps to 41 fs [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(23): 5877-5880.
- [44] Krötz P, Grebing C, Herkommer C, et al. High-power ultrafast industrial thin-disk lasers [C]// *Laser Congress 2019 (ASSL, LAC, LS&C)*, September 29-October 3, 2019, Vienna, Austria. Washington, D.C.: OSA, 2019: CTu1C.4.
- [45] Tsai C L, Meyer F, Omar A, et al. 27-fs, 166-MW pulses at 98 W average power from highly efficient thin-disk oscillator driven nonlinear compressor [C]// *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)*, June 23-27, 2019, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2019.

## Nonlinear Pulse Compression of All-Solid-State Ultra-Fast Laser

Gao Zichen<sup>1,2</sup>, Guo Jie<sup>1\*</sup>, Liang Xiaoyan<sup>1\*\*</sup>

<sup>1</sup> *State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;*

<sup>2</sup> *Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*

### Abstract

**Significance** High-power all-solid-state ultra-fast lasers are highly efficient, stable, compact, and cost-effective. They have several scientific and industrial applications that benefit from short pulse width and high power. Laser systems based on Ti:Sapphire deliver sub 100 fs pulses easily, but their average power is limited to a few watts. Yb-based laser systems can reach a few hundred watts, even more than a kilowatt, but their pulse widths are restricted to 100 fs due to the gain bandwidths of the laser medium. In order to meet the increasingly demanding requirements of lasers in various fields, it is necessary to develop nonlinear pulse compression technology to obtain higher peak power.

According to the theory of the time-width product of a Fourier-transform limited pulse, spectral broadening is an inevitable step before nonlinear pulse compression. When propagating through nonlinear medium, the spectrum of high energy laser pulses is broadened due to self-phase modulation based on the optical Kerr effect. After subsequent chirp removal of the spectrally broadened pulse, a temporally compressed pulse can be obtained. As a result, the pulse compression relies on nonlinear spectral broadening. Nonlinear pulse compression methods can be distinguished according to the nonlinear medium used for spectral broadening. Different methods are suitable for different pulse energies and peak powers; their compression effects also differ.

In recent years, various methods have been proposed to achieve higher peak power, enhance compression ratio, and improve efficiency. However, these methods still face a series of challenges. Therefore, it is necessary to summarize the current research progress and future prospects of nonlinear pulse compression to guide future development of this field.

**Progress** The method based on bulk dielectrics is the earliest compression approach for high energy pulses. Rolland et al used bulk silica as the nonlinear medium to broaden the spectrum. They compressed a 100- $\mu\text{J}$  pulse from 100 fs to 20 fs, but space chirp of the broadened spectrum was severe and the loss of pulse energy was too high. When propagating through a bulk dielectric, an ultrafast laser with high peak power can cause catastrophic self-focusing due

to the low critical power of bulk media. The self-focusing critical power of noble gases is much higher than that of dielectrics because of the smaller nonlinearity of gases. Hence, hollow-core fibers with noble gases are effective in the compression of high peak power ultrafast lasers. This approach was proven in 1996 and the disadvantages of compression based on a dielectric nonlinear medium were overcome. Nonlinear pulse compression from 740 fs to 88 fs was achieved using the gas-filled hollow-core fiber approach in 2014 (Fig. 3). Pulse energy is limited in this scheme due to the waveguide effect.

Therefore, a different approach for higher peak power, broadening the spectrum with multiple fused silica plates, was developed in 2014 (Fig. 4). This approach overcame the limitation of pulse energy and can be applied to higher peak power ultrafast lasers. However, the broadened spectrum of this method is inhomogeneous, thereby limiting the compression efficiency. In order to solve this problem, a new technique using a multi-pass cell (MPC) was presented by Schult et al. in 2016. The MPC technique depends on repeated propagation through a nonlinear medium with a small nonlinear phase for each pass. This ensures homogeneous spectral broadening because the nonlinear phase per pass is chosen to be so small that the impact of propagation is negligible. A compressed pulse with 6.5-MW peak power and 330 W average power from 860 fs to 115 fs was achieved by using fused silica as the nonlinear medium; the conversion efficiency of this method is more than 90% (Fig. 6). A noble gas was used as the nonlinear medium, due to the larger self-focusing critical power of gas compared with dielectric material, and they achieved compressed pulses with 530-W average power from 590 fs to 26.5 fs with 58 passes and 3.5 bar Argon (Fig. 8). The highest compressed pulse energy achieved by MPC is 18 mJ with a 39 fs pulse duration.

Furthermore, when a certain compression method is insufficient, two-stage nonlinear compression is another effective method that can obtain laser pulses with shorter pulse duration and higher peak power. A compressed average power of 98 W and 166 MW peak power with 27 fs was demonstrated in 2019 by combining a MPC with multiple plates (Fig. 10).

**Conclusions and Prospects** Nonlinear pulse compression is a current research focus in the field of ultra-fast lasers. The approach for pulse compression based on gas-filled hollow-core fibers is still the method primarily adopted to obtain few-cycle pulses with high energy. However, the pulse energy obtained by this method is limited due to catastrophic self-focusing. Multiple fused silica plates is an approach that omits the waveguide, so it can be applied to laser pulses with high peak power. Additionally, the approach based on a MPC ensures homogeneous spectral broadening, reduces energy loss, and improves compression efficiency. Compared with a dielectric medium, such as fused silica, a noble gas has a lower nonlinear index of refraction, therefore a gas-filled MPC is suitable for higher peak power. Furthermore, two-stage nonlinear pulse compression is also an effective option. Nonlinear pulse compression technology enhances the applications of Yb-based and even Ti:Sapphire laser systems. New and efficient methods applicable for higher energy pulses or capable of achieving a higher compression ratio are expected to emerge.

**Key words** laser optics; all-solid-state laser; nonlinear pulse compression; self-phase modulation

**OCIS codes** 140.3580; 320.5520; 190.3270