

超连续白光光谱特性研究

曹赫^{1,2}, 章媛³, 李兢兢^{1,2}, 张志斌³, 邓岩岩^{1,2}, 吕志伟^{1,2}, 王雨雷^{1,2}, 夏元钦^{1,2*}¹河北工业大学电子信息工程学院先进激光技术研究中心, 天津 300401;²河北工业大学河北省先进激光技术与装备重点实验室, 天津 300401;³哈尔滨工业大学可调谐激光技术国家重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150080

摘要 利用中心波长为 800 nm、脉冲宽度为 35 fs 的飞秒激光脉冲开展了以蓝宝石晶体为介质的超连续白光光谱特性研究,通过对比不同入射脉冲能量下焦距为 40 mm 的球面透镜产生的白光光谱发现:随着入射脉冲能量的增强,白光光谱向蓝边方向展宽,当能量增加到 210 nJ 时,光谱范围不再变化。对比焦距为 40 mm 的球面透镜和消色差透镜产生的白光光谱发现:消色差透镜产生的光谱的整体强度小于球面透镜,且光谱有一定蓝移,蓝移波长可达 450 nm。采用 Zemax 软件对两种透镜产生的焦斑进行仿真,比较了两种透镜产生的焦斑的大小和能量,并分析了蓝移现象产生的原因。同时,本研究对比了焦距为 40 mm 和 100 mm 球面透镜、消色差透镜产生的白光光谱的范围和稳定性,结果表明,焦距为 40 mm 的透镜产生的白光光谱的稳定性较好,光谱范围较宽,约为 450~700 nm。罗丹明 B 的瞬态吸收实验结果表明,使用焦距为 40 mm 的消色差透镜时,罗丹明 B 的瞬态吸收信号最为明显,信噪比最高。本实验表明,针对不同的样品特性,可以通过选择不同的透镜来优化瞬态吸收实验结果。

关键词 非线性光学; 飞秒激光; 超连续白光; 瞬态吸收

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1111003

1 引言

超连续白光将超短激光脉冲射入透明非线性介质内,由于介质的色散和各种非线性效应,出射激光光谱得到极大展宽而产生的具有连续光谱分布的白光。超连续白光具有光谱范围宽、稳定性强、产生方法简单等优点,已被广泛应用于光学仪器(如光学参量放大器^[1])研究和光谱实验中,如光脉冲压缩^[2-3]、激光诱导结构跃迁的动态表征^[4]以及时间分辨光谱实验^[5]等。2020年,Qian等^[6]利用超连续白光证明了各向异性结构是超连续体介质自诱导双折射产生的主要原因,这对偏振器件的研究提供了较大帮助。

此外,超连续白光的产生机理引起了大量科研人员的兴趣^[7-14]。1970年,Alfano等^[15]利用皮秒脉冲激励从方解石、石英、氯化钠和一些玻璃中观察到了频率展宽和小尺度细丝现象,并确定了频率展宽

机制为自相位调制。随后,人们提出了自聚焦^[16-19]、电离增强自相位调制^[20]和四波混频^[18]等效应,用其解释超连续谱的产生机制。1999年,Brodeur等^[16]利用 140 fs 钛蓝宝石激光脉冲研究了氟化锂、氟化钙和水等透明介质所产生的超连续白光,证明了超连续白光的产生机理与自聚焦阈值有关,并发现超连续谱的宽度随着阈值的增加而变宽。目前,人们普遍认为超连续白光的产生机理是:高能量飞秒脉冲聚焦到晶体中发生光学克尔效应,导致光束自聚焦,进而导致脉冲峰值强度急剧增加,激活多光子电离,产生局部弱电离等离子体斑点。与此同时,激光能量导致的折射率变化迫使光束在自聚焦形成另一个等离子体斑点之前发生色散。光束在离开晶体之前多次重复上述现象,晶体中就产生了等离子体丝。在上述过程中会同时伴随着其他非线性效应,这些效应会导致初始脉冲频率蓝移,从而产生超连续白光^[21-22]。

产生超连续白光常用的介质有很多^[23-27]。氟化

收稿日期: 2021-10-08; 修回日期: 2021-11-08; 录用日期: 2021-11-15

基金项目: 国家自然科学基金(61975050, 61675057, 32075056)、河北省自然科学基金(F2021202055)

通信作者: *xiayq@hebut.edu.cn

钙产生的超连续白光短波从 300 nm 左右开始,但氟化钙在长时间的激光聚焦后会发生热损伤;水产生的超连续白光光谱短波从 400 nm 左右开始,但基频光和产生的超连续白光通过样品池时会引入额外的啁啾;蓝宝石产生的超连续白光短波从 450 nm 左右开始,光谱相对稳定且谱线比较平滑。因此,许多超连续白光装置使用蓝宝石晶体作为产生超连续白光的介质。

不同的介质产生的超连续白光的特点和光谱范围有所不同,而且相同介质在不同条件下产生的超连续白光也不相同。2009 年,Bradler 等^[28]基于晶体厚度、入射脉冲能量和入射激光波长(775~1600 nm),研究了光参量放大和飞秒激光光谱实验中以 YAG、YVO₄ 等材料为介质产生的超连续白光的稳定性。2014 年,Bradler 等^[29]以 YAG 和氟化钙晶体产生的超连续白光作为泵浦探测技术的探测光,研究了其作为探测光的稳定性。为了获得近红外波长下的超连续白光,2015 年,Han 等^[30]将脉宽为 50 fs、中心波长为 800 nm 的激光脉冲聚焦到 12 mm 厚蓝宝石晶体棒上,产生了波长范围为 900~1100 nm 的较稳定的超连续白光。2021 年,Ishii 等^[31]将脉宽为 1 ps、中心波长为 1030 nm 的激光脉冲聚焦到 20 mm 厚 YAG 晶体中,产生了波长范围为 1600~2400 nm 的超连续白光。除了改变晶体厚度外,还有其他可以获得超连续白光的方法。2019 年,李子熙等^[32]研究了不同入射激光能量和晶体取向条件下,飞秒激光在氟化钙晶体中产生的超连续谱;他们发现,在一定入射激光能量范围内,飞秒激光会在晶体中产生光强钳制效应,这使得超连续谱的最大蓝移截止波长保持不变,且最大蓝移截止波长与晶体取向无关。

目前,多数实验研究都通过改变入射激光的脉宽与强度、调整介质种类和变换晶体取向等方法来得到不同强度和波长范围的超连续白光^[32-33],如,李子熙等^[32]使用焦距为 200 mm 的球面透镜聚焦飞秒激光脉冲于 20 mm 厚氟化钙晶体中产生了超连续白光;也有一部分人针对超连续白光的产生装置(用于聚焦入射激光的透镜是此装置中必不可少的部分)进行改进,如,Bradler 等^[28]和 Christoph 等^[34]使用焦距为 100 mm 的消色差透镜聚焦入射脉冲于蓝宝石晶体中,产生了较高质量的超连续白光。本课题组首先搭建了一套以蓝宝石晶体为介质的超连续白光产生装置,对比了超连续白光稳定条件下焦距为 40 mm 的球面透镜以及焦距同为

40 mm 和 100 mm 的球面透镜与消色差透镜产生的超连续白光的光谱特性;随后搭建了一套瞬态吸收实验装置,分别以上述条件下产生的超连续白光作为探测光,对罗丹明 B 样品进行瞬态吸收测试。测试结果表明,使用消色差透镜可使产生的超连续白光光谱蓝移,这对于测量罗丹明 B 这种在紫外波段有瞬态吸收信号的分子系统有极大优势;同时,使用消色差透镜可以测量得到罗丹明 B 比较完整的吸光度信号,从而可以对样品分子进行全面分析。此外,实验还发现,对于长焦透镜,不论是消色差透镜还是球面透镜,其产生的超连续白光信号的光谱抖动性相对于短焦透镜更大,不利于微弱信号的测量。因此,在进行探测光路搭建时,选择短焦透镜更有利于保证信号的稳定性。此外,可以根据样品的特性选择消色差透镜,用得到的蓝移的超连续白光光谱对紫外波段信号进行探测,或者选择短焦球面透镜对未涉及紫外波段的样品进行测量。

2 实验与仿真

2.1 超连续白光产生实验装置

超连续白光产生实验装置如图 1 所示。实验中使用的飞秒激光系统(Spectra-Physics)由飞秒振荡器和飞秒再生放大器组成。该系统输出的光脉冲参数如下:中心波长为 800 nm,重复频率为 1 kHz,脉冲宽度为 35 fs。由于飞秒激光的脉冲能量过高,因此使用分束镜(10:90)来降低脉冲能量,并通过可变中性密度滤光片和光阑精细调节入射脉冲能量和入射光斑尺寸。输出的光脉冲经安装在精密平移台上的透镜聚焦到 3 mm 厚蓝宝石晶体中产生超连续白光。在本次实验中,利用 4 种不同的透镜作为聚焦装置来产生超连续白光。选择透镜型号后,通过精密平移台调节蓝宝石中心点与透镜焦点之间的距离,观察不同离焦量下产生的超连续白光。超连续白光经过准直后用另一个透镜收集到光纤光谱仪(Ocean Optics HR4000CG-UV-NIR)中。光谱仪的波长范围为 200~1200 nm,积分时间为 4 ms~20 s。通过调节可变中性密度滤光片、光阑孔径和精密平移台获得稳定且强度较高的超连续白光光谱。为研究超连续白光的可见光部分,在蓝宝石晶体之后添加短波通滤波片(—700 nm)。该短波通滤波片对光谱无影响,图 2 所示为该短波通滤波片的透过率曲线,该滤波片对波长小于 685 nm 的光的透过率大于 95%。

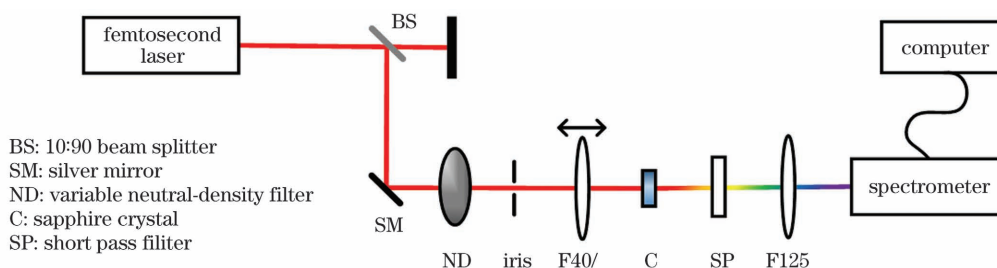


图 1 超连续白光产生实验装置图

Fig. 1 Experimental setup for white-light continuum generation

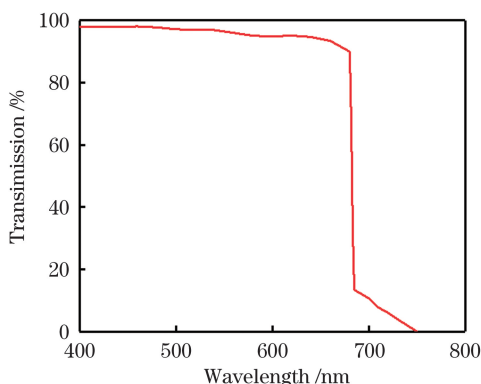


图 2 短波通滤波片的透过率曲线

Fig. 2 Transmission curve of short pass filter

2.2 瞬态吸收实验

瞬态吸收实验装置如图 3 所示,图中未标注的黑色短线部分均为平面反射镜。由飞秒激光系统产

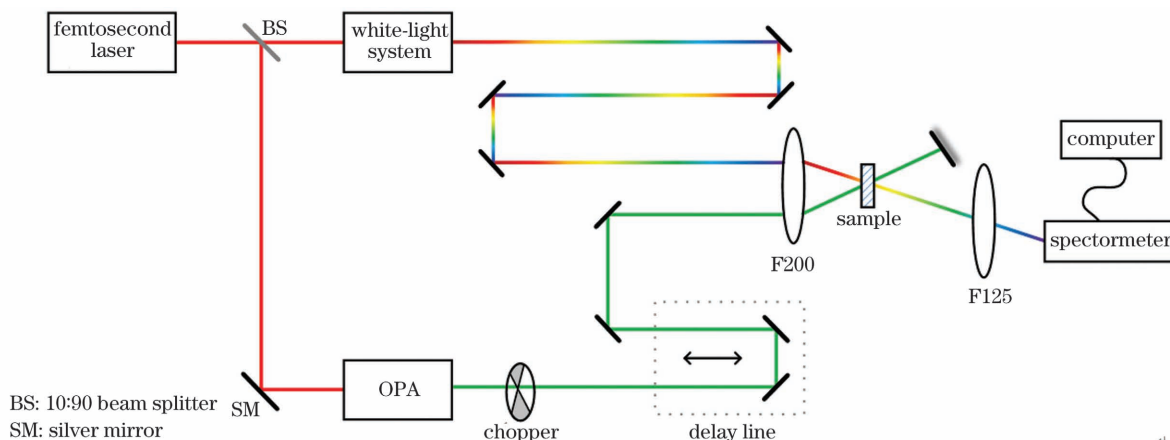


图 3 瞬态吸收实验装置图

Fig. 3 Experimental setup for transient absorption

2.3 焦点光斑的 Zemax 仿真

为了解不同透镜的聚焦特点,用 Zemax 软件分别对焦距为 40 mm 的消色差透镜和焦距为 40 mm 的球面透镜聚焦形成的焦点光斑进行模拟,得到焦点光斑点列图,如图 4 所示,图中每一小方格的尺寸为 $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ 。Zemax 设置如下:入射脉冲的中心波长为 800 nm,带宽为 60 nm,入

生的飞秒激光脉冲通过分束片分束,其中的一束用来产生超连续白光(作为瞬态吸收实验的探测光),另一束经过光学参量放大器(OPA)系统,该系统可以产生波长范围为 350~2600 nm 的激光脉冲(作为瞬态吸收实验的泵浦光)。从 OPA 出射的泵浦光经过反射镜进入延迟线光路,延迟线长度最大为 200 mm,利用斩波器对泵浦光进行斩波。随后,泵浦光和探测光被透镜聚焦到样品中心,用光谱仪对透射的探测光进行采集。通过调整泵浦光和探测光的延迟时间,可以得到不同时刻的光谱信息。最后通过计算得到样品的吸光度 ΔA ,计算公式为

$$\Delta A = \lg\left(\frac{I_0}{I_1}\right), \quad (1)$$

式中: I_0 为泵浦光被斩波器挡住时探测光的强度; I_1 是泵浦光未被斩波器挡住时探测光的强度。

射瞳孔直径为 3 mm。为了更直观地对比两种透镜的焦斑特征,将两种透镜产生的焦斑的均方根半径(RMS radius)和几何半径(GEO radius)列于表 1 中。当入射激光脉冲通过球面透镜聚焦时,不同波长的光在经过透镜时会以不同的折射率传播,且波长越大,折射率越小,故 800~830 nm 波段的光会在 800 nm 光之前聚焦,而 770~800 nm

波段的光会在 800 nm 光之后聚焦。以 800 nm 光聚焦的焦点所在的平面为基准面,就会出现图 4(b)所示的焦点光斑特征,即长波长的光在外侧,而短波长的光在内侧。对于消色差透镜来说,

它的第一块正透镜的色散可由第二块负透镜校正,宽带性能比球面透镜好,所以焦点处的光斑更小且更均匀[如图 4(a)所示],同时焦斑处的能量也相对更高。

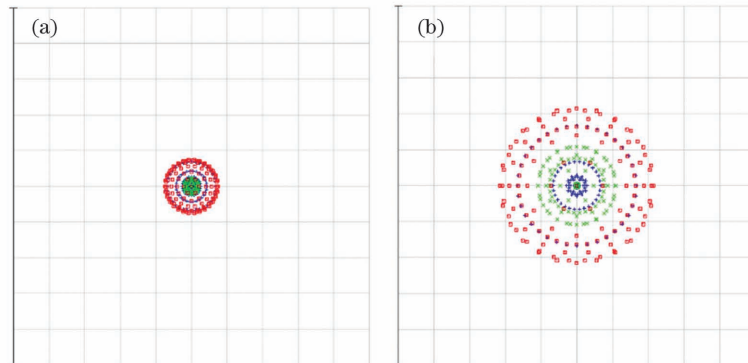


图 4 消色差透镜和球面透镜对 800 nm 激光束聚焦的焦点光斑 Zemax 模拟图。(a) 40 mm 消色差透镜;(b) 40 mm 球面透镜

Fig. 4 Zemax simulation of focal spot of 800 nm laser beam focused by achromatic lens and ordinary spherical lens.
(a) Achromatic lens with a focal length of 40 mm; (b) spherical lens with a focal length of 40 mm

表 1 不同种类透镜产生的焦点光斑特征对比

Table 1 Comparison of focal spot characteristics produced by different kinds of lenses

Type of lens	Focal length /mm	RMS radius / μm	GEO radius / μm
Achromatic lens	40	0.467	0.746
Spherical lens	40	1.279	2.148

3 结果与讨论

图 5 所示为实验测得的在不同入射脉冲能量下飞秒激光通过 40 mm 球面透镜聚焦到蓝宝石晶体产生的超连续白光光谱图。为了更好地对比光谱范围和形状的变化,对下述所有超连续白光数据都进行了归一化处理。从图 5 可以看出,随着入射脉冲能量增强,光谱向蓝边方向展宽,且光谱宽度也有所增加,在 625 nm 附近的光谱强度逐渐降低。此外,当入射脉冲能量大于 210 nJ 后,光谱不再蓝移,光谱整体范围也不再变化。产生这一变化的主要原因是克尔自聚焦效应和等离子体散焦效应保持了一定的平衡^[35]。可用公式表示为

$$\Delta\omega(z, t) = -aI_0 \frac{\partial f(t)}{\partial t} + bI_0^m f^m(t), \quad (2)$$

式中: $\Delta\omega(z, t)$ 为频谱变化函数; I_0 为峰值脉冲强度; $f(t)$ 为脉冲函数; t 为时间; z 为光束在介质中的传播距离; m 为电子从价带跃迁到导带所需的最小光子数; a, b 是与变量 t 无关的常数。式(2)等号右侧第一项表示由材料的非线性折射引起的频移,即自相位调制效应,该项与峰值脉冲强度 I_0 成正

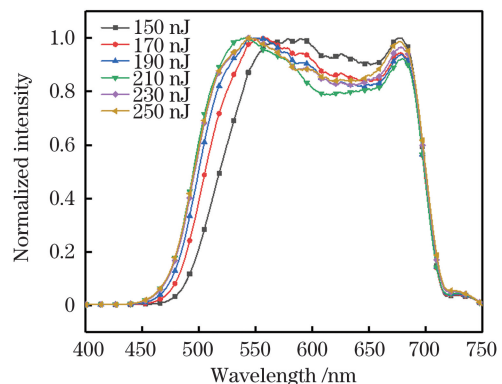


图 5 焦距为 40 mm 的球面透镜产生的超连续白光光谱随入射脉冲能量的变化

Fig. 5 White-light continuum spectrum produced by a spherical lens with a focal length of 40 mm varying with incident pulse energy

比;等号右侧第二项表示光与自由电子相互作用导致的频移,即电离效应,该项与峰值脉冲强度 I_0 的 m 次方成正比。由此可知,当脉冲强度较低时,电离效应与峰值脉冲强度 I_0 的 m 次方成正比,故而可以忽略这一项的贡献,此时自相位调制效应占主导。由于入射脉冲具有上升沿和下降沿,自相位调制效应会使光谱低频红移、高频蓝移,因此光谱向两

侧展宽。当脉冲强度较高时,电离效应占主导,并且该项恒为正值,只引起光谱蓝移。

为了对比消色差透镜和球面透镜对超连续白光产生的影响,本课题组测得了焦距均为 40 mm 的消色差透镜和球面透镜产生的最稳定的超连续白光光谱,如图 6 所示。可以发现,与球面透镜相比,消色差透镜产生的白光光谱发生了非常明显的蓝移,后者峰值对应的中心波长为 500 nm,前者约为 530 nm,而且消色差透镜产生的白光的整体强度相比球面透镜要弱。如表 1 所示,利用 40 mm 消色差

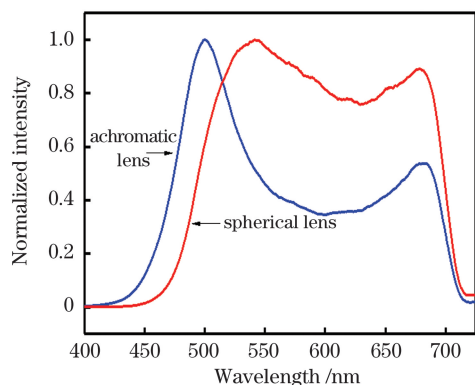


图 6 焦距为 40 mm 的消色差透镜和球面透镜产生的超连续白光光谱对比图

Fig. 6 Comparison chart of white-light continuum spectra produced by achromatic lens and spherical lens with a focal length of 40 mm

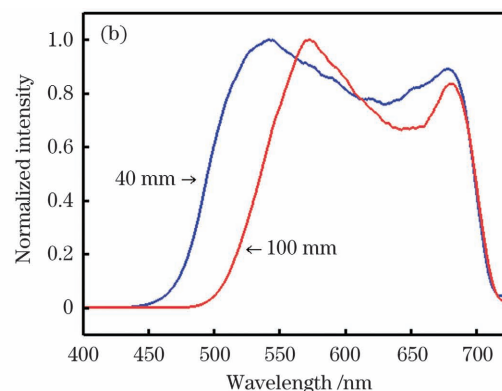
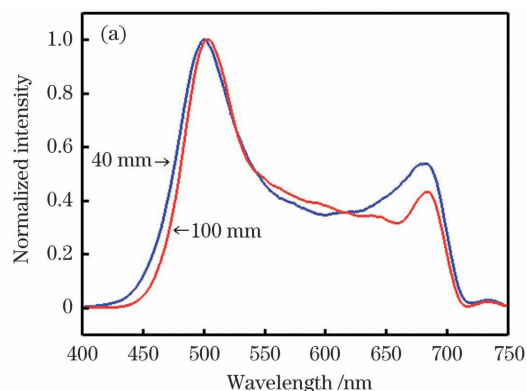


图 7 不同焦距的消色差透镜和球面透镜产生的超连续白光光谱对比图。(a)消色差透镜;(b)球面透镜

Fig. 7 Comparison of white-light continuum spectra produced by achromatic lenses and spherical lenses with different focal lengths. (a) Achromatic lenses; (b) spherical lenses

在对比了不同焦距的消色差透镜和球面透镜产生的光谱之后,本课题组对两种透镜产生的白光光谱的稳定性也进行了测试,测试结果如图 8 所示。可以发现:焦距为 40 mm 的消色差透镜和球面透镜产生的白光光谱相对稳定,光谱的整体抖动性小;焦距为 100 mm 的消色差透镜的稳定性较差,光谱的整体抖动性大;焦距为 100 mm 的球面透镜在

透镜聚焦入射脉冲形成的焦斑的均方根半径为 $0.467 \mu\text{m}$,而利用 40 mm 球面透镜聚焦入射脉冲形成的焦斑的均方根半径为 $1.279 \mu\text{m}$ 。这说明后者聚焦形成的焦斑半径大,光子密度小,而前者的光子密度较大,能量更为集中。根据式(2),当入射脉冲能量较高时,电离效应占主导,光谱发生蓝移。

为了对比不同焦距的透镜对超连续白光产生的影响,本课题组分别测得了 40 mm 和 100 mm 消色差透镜、球面透镜产生的稳定的超连续白光光谱图,如图 7 所示。从图 7 可以看出:40 mm 消色差透镜与 100 mm 消色差透镜产生的白光光谱范围基本一致,波长范围为 450~700 nm,40 mm 消色差透镜产生的光谱相比 100 mm 消色差透镜产生的光谱只发生了微弱蓝移;40 mm 球面透镜与 100 mm 球面透镜产生的白光光谱范围相差较大,40 mm 球面透镜产生的白光光谱范围为 460~700 nm,而 100 mm 球面透镜产生的白光光谱范围为 500~700 nm,40 mm 球面透镜产生的光谱相比 100 mm 球面透镜产生的光谱发生了较大蓝移。这是因为短焦透镜在焦点位置处的能量更集中,光子分布更均匀,产生的超连续白光在稳定条件下发生明显蓝移,而且短焦透镜的焦深较短,在晶体中的作用距离短,对于较薄的蓝宝石晶体而言,所产生的单丝通道更加稳定。

500~550 nm 波长范围内的稳定性较差,在 550~650 nm 波长范围内的稳定性较好。

最后,为说明对于不同的样品特征可以选择不同的透镜来提高瞬态吸收实验信号的强度,本课题组以罗丹明 B 样品为例(罗丹明 B 基态漂白信号的中心波长为 550 nm,激发态吸收信号的波长范围为 450~500 nm),对其进行瞬态吸收实验。分别搭建

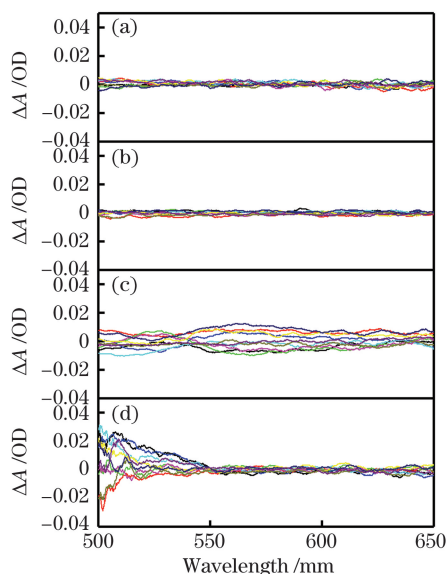


图 8 不同透镜产生的超连续白光光谱的噪声对比图。

(a) 40 mm 消色差透镜; (b) 40 mm 球面透镜;
(c) 100 mm 消色差透镜; (d) 100 mm 球面透镜

Fig. 8 Comparison of white-light continuum spectral noise produced by different lenses. (a) Achromatic lens with a focal length of 40 mm; (b) spherical lens with a focal length of 40 mm; (c) achromatic lens with a focal length of 100 mm; (d) spherical lens with a focal length of 100 mm

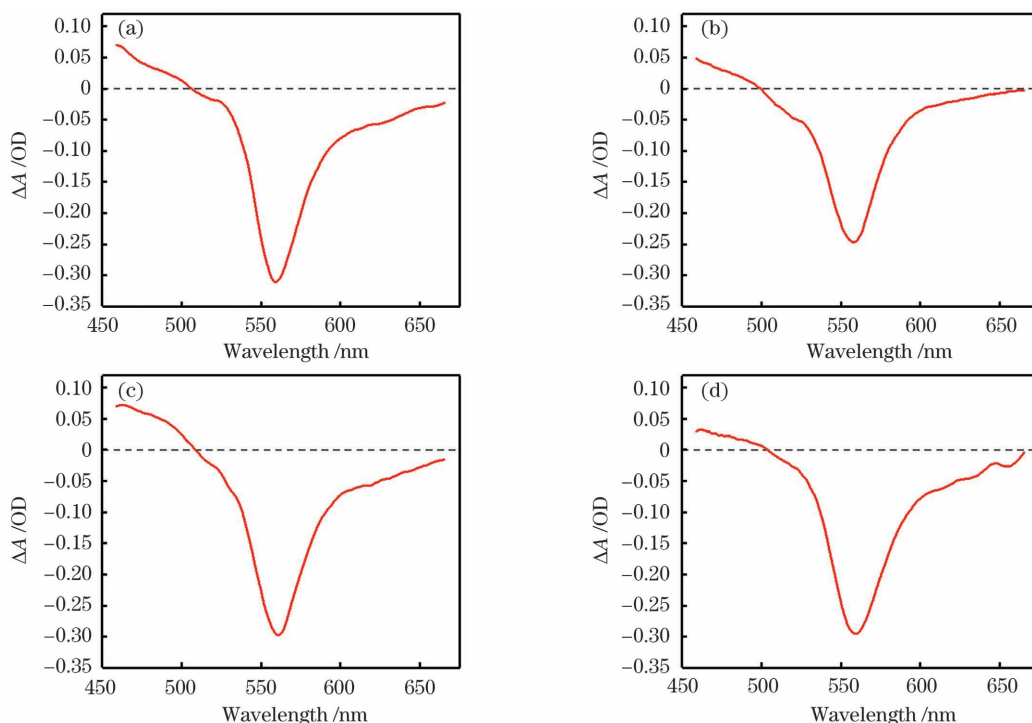


图 9 在延迟时间为 1 ps 时罗丹明 B 的瞬态吸收曲线。(a) 40 mm 消色差透镜; (b) 40 mm 球面透镜; (c) 100 mm 消色差透镜; (d) 100 mm 球面透镜

Fig. 9 Transient absorption curve of rhodamine B with delay time of 1 ps. (a) Achromatic lens with a focal length of 40 mm; (b) spherical lens with a focal length of 40 mm; (c) achromatic lens with a focal length of 100 mm; (d) spherical lens with a focal length of 100 mm

了采用上述 4 种聚焦透镜的超连续白光系统,并将这 4 种不同的超连续白光系统应用于瞬态吸收实验,将超连续白光作为探测光。图 9 给出了在延迟时间为 1 ps 时罗丹明 B 的瞬态吸收曲线。可以看到,图 9(a)、(c)中罗丹明 B 的激发态吸收信号和基态漂白信号最为明显,而图 9(b)中基态漂白信号相对较弱,图 9(d)中激发态吸收信号相对较弱。所以,对于激发态吸收信号较弱的罗丹明 B 样品,40 mm 和 100 mm 消色差透镜对应的实验结果更好。

4 结 论

本课题组根据超连续白光产生的原理,搭建了基于 4 种不同透镜聚焦的白光产生装置,对比讨论了 4 种装置产生的超连续白光的光谱特征。通过软件仿真与实验论证,得出:1)使用消色差透镜会产生更加蓝移的超连续白光光谱。这是因为消色差透镜会大大降低色散对光束聚焦的影响,使得聚焦光束的焦斑半径较小且光子分布均匀,相同能量下焦斑处的光子密度更高,聚焦在蓝宝石晶体中会产生明显的蓝移现象。2)使用短焦透镜会导致超连续白光光谱蓝移,且光谱稳定性更好。对于同种特性的透

镜,不同的焦距也会使焦点位置处的焦斑半径和焦深不同。当光束作用于蓝宝石晶体时,短焦透镜由于在焦点位置处的能量更集中,光子分布更均匀,产生的超连续白光在稳定条件下会发生明显的蓝移现象;此外,由于短焦透镜的焦深较短,在蓝宝石晶体中的作用距离短,因此在蓝宝石晶体中产生的单丝通道更加稳定,产生的超连续白光也更加稳定,从而进一步提高了瞬态吸收光谱实验的稳定性。

在搭建好的 4 种超连续白光装置的基础上,利用罗丹明 B 进行瞬态吸收实验。实验结果表明:蓝移的超连续白光更有利于测得罗丹明 B 的激发态吸收信号,得到罗丹明 B 比较完整的瞬态吸收信息,这对于研究罗丹明 B 的特性至关重要。因此,对于罗丹明 B 样品的测量,可以有针对性地选择短焦消色差透镜。

本文验证了不同的透镜特性会导致超连续白光光谱范围略有不同,在对样品进行瞬态吸收实验时可以根据样品的特性选择透镜。此外,本课题组在实验中发现短焦透镜更容易得到稳定的超连续白光光谱。本实验结果可应用到其他超连续白光产生实验中,如飞秒受激拉曼散射实验和光学参量放大实验。

参 考 文 献

- [1] Cerullo G, Nisoli M, de Silvestri S. Generation of 11-fs pulses tunable across the visible by optical parametric amplification [C] // Technical Digest. Summaries of Papers Presented at the Conference on Lasers and Electro-Optics. Conference Edition. 1998 Technical Digest Series, Vol. 6 (IEEE Cat. No. 98CH36178), May 3-8, 1998, San Francisco, CA, USA. New York: IEEE Press, 1998: 18-19.
- [2] 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.
- [3] Liebel M, Schnedermann C, Wende T, et al. Principles and applications of broadband impulsive vibrational spectroscopy[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2015, 119(36): 9506-9517.
- [4] Glezer E N, Siegal Y, Huang L, et al. Laser-induced band-gap collapse in GaAs [J]. Physical Review B, 1995, 51(11): 6959-6970.
- [5] Zhang H Y, Rong S P, Zhang P Y. Photoinduced simultaneous thermal and photocatalytic activities of MnO_2 revealed by femtosecond transient absorption spectroscopy [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13(16): 18944-18953.
- [6] Qian J, Wang G D, Lou K Y, et al. Self-induced birefringence of white-light continuum generated by interaction of focused femtosecond laser pulses with fused silica [J]. High Power Laser Science and Engineering, 2020, 8: e19.
- [7] Wang L, Yan J X, Chen X H, et al. Experimental study on the chirp of the white-light continuum generation in CaF_2 and sapphire [J]. Proceedings of SPIE, 2005, 5646: 108-111.
- [8] Quan D H, Liu S L, Zhang L, et al. Experimental study on the chirped structure of the white-light continuum generation by femtosecond laser spectroscopy [J]. Chinese Physics, 2003, 12(9): 986-991.
- [9] Salamé R, Lascoux N, Salmon E, et al. Propagation of laser filaments through an extended turbulent region [J]. Applied Physics Letters, 2007, 91(17): 171106.
- [10] Fork R L, Shank C V, Hirlimann C, et al. Femtosecond white-light continuum pulses [J]. Optics Letters, 1983, 8(1): 1-3.
- [11] Yang G, Shen Y R. Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium [J]. Optics Letters, 1984, 9(11): 510-512.
- [12] Aközbeke N, Scalora M, Bowden C M, et al. White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air [J]. Optics Communications, 2001, 191(3/4/5/6): 353-362.
- [13] Liu J S, Schroeder H, Chin S L, et al. Nonlinear propagation of fs laser pulses in liquids and evolution of supercontinuum generation [J]. Optics Express, 2005, 13(25): 10248-10259.
- [14] Imran T, Hussain M, Figueira G. Cross-correlation frequency-resolved optical gating of white-light continuum (500-900 nm) generated in bulk media by 1053 nm laser pulses [J]. Laser Physics Letters, 2016, 13(6): 066101.
- [15] Alfano R R, Shapiro S L. Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses [J]. Physical Review Letters, 1970, 24(11): 592-594.
- [16] 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.
- [17] Corkum P B, Rolland C, Srinivasan-Rao T. Supercontinuum generation in gases [J]. Physical Review Letters, 1986, 57(18): 2268-2271.

- [18] Penzkofer A, Beidoun A, Lehmeier H J. Spectral superbroadening of self-focused picosecond laser pulses in D_2O [J]. *Optical and Quantum Electronics*, 1993, 25(5): 317-349.
- [19] Ranka J K, Schirmer R W, Gaeta A L. Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media [J]. *Physical Review Letters*, 1996, 77(18): 3783-3786.
- [20] Bloembergen N. The influence of electron plasma formation on superbroadening in light filaments [J]. *Optics Communications*, 1973, 8(4): 285-288.
- [21] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation in transparent media [J]. *Physics Reports*, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [22] Bergé L, Skupin S, Nuter R, et al. Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2007, 70(10): 1633-1713.
- [23] François V, Ilkov F A, Chin S L. Experimental study of the supercontinuum spectral width evolution in CO_2 gas [J]. *Optics Communications*, 1993, 99(3/4): 241-246.
- [24] He G S, Xu G C, Cui Y, et al. Difference of spectral superbroadening behavior in Kerr-type and non-Kerr-type liquids pumped with ultrashort laser pulses [J]. *Applied Optics*, 1993, 32(24): 4507-4512.
- [25] Brodeur A, Ilkov F A, Chin S L. Beam filamentation and the white light continuum divergence [J]. *Optics Communications*, 1996, 129(3/4): 193-198.
- [26] Wang P, Huang J P, Xie S R, et al. Broadband mid-infrared supercontinuum generation in dispersion-engineered As_2S_3 -silica nanospire waveguides pumped by $2.8 \mu m$ femtosecond laser [J]. *Photonics Research*, 2021, 9(4): 630-636.
- [27] Nam S H, Nagar G C, Dempsey D, et al. Multi-octave-spanning supercontinuum generation through high-energy laser filaments in YAG and ZnSe pumped by a $2.4 \mu m$ femtosecond Cr:ZnSe laser [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2021, 9: e12.
- [28] Bradler M, Baum P, Riedle E. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- μJ pump pulses [J]. *Applied Physics B*, 2009, 97(3): 561-574.
- [29] Bradler M, Riedle E. Temporal and spectral correlations in bulk continua and improved use in transient spectroscopy [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2014, 31(7): 1465-1475.
- [30] Han D J, Li Y Y, Du J, et al. Ultrafast laser system based on noncollinear optical parametric amplification for laser spectroscopy [J]. *Chinese Optics Letters*, 2015, 13(12): 121401.
- [31] Ishii N, Maruyama M, Nagashima K, et al. Generation and compression of an intense infrared white light continuum in YAG irradiated by picosecond pulses [J]. *Optics Express*, 2021, 29(11): 17069-17076.
- [32] 李子熙, 龚成, 华林强, 等. 强飞秒激光在氟化钙晶体中产生的超连续谱 [J]. *中国激光*, 2019, 46(5): 0508021.
Li Z X, Gong C, Hua L Q, et al. Supercontinuum generation in calcium fluoride crystals using high-intensity femtosecond laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(5): 0508021.
- [33] 冯柳宾, 鲁欣, 刘晓龙, 等. 飞秒激光离焦抽运熔融石英产生超连续白光的实验研究 [J]. *物理学报*, 2012, 61(17): 174206.
Feng L B, Lu X, Liu X L, et al. Off-focus generation of strong super-continuum emission in fused silica using high power femtosecond laser pulses [J]. *Acta Physica Sinica*, 2012, 61(17): 174206.
- [34] Christoph S. Probing the molecular basis of photochemistry and photophysics with vibrational coherence spectroscopy [D]. Oxford: University of Oxford, 2015.
- [35] 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.

Spectral Characteristics of White-Light Continuum

Cao He^{1,2}, Zhang Yuan³, Li Jingjing^{1,2}, Zhang Zhibin³, Deng Yanyan^{1,2},
Lü Zhiwei^{1,2}, Wang Yulei^{1,2}, Xia Yuanqin^{1,2*}

¹Center for Advanced Laser Technology, School of Electronic and Information Engineering,
Hebei University of Technology, Tianjin 300401, China;

²Hebei Key Laboratory of Advanced Laser Technology and Equipment, Hebei University of Technology,
Tianjin 300401, China;

³National Key Laboratory of Science and Technology on Tunable Laser, Harbin Institute of Technology,
Harbin 150080, Heilongjiang, China

Abstract

Objective White-light continuum has the advantages of wide spectral range, strong stability, and simple generation method. It is widely used in optical instruments and spectrum investigations, including optical parametric amplifiers, optical pulse compression, dynamic analysis of laser-induced structural transitions, and time-resolved spectral studies. The identification of a suitable method to generate white-light continuum with wide spectral range has always been a major issue. At present, to achieve different intensity and wavelength ranges, the white-light continuum is usually generated by changing the pulse width and intensity of the incident laser, adjusting the type of medium, and changing the crystal orientation.

The lens used to focus the incident laser is a crucial aspect of the white-light continuum generation equipment; however, there are few advances and studies on it.

In this study, we suggest a method for modifying the focal length and type of lens to generate a white-light continuum spectrum suitable for the band involved in the transient absorption experimental sample. Based on the research results, a new approach and method for the construction of white-light continuum system and transient absorption system can be identified.

Methods In this experiment, first, a set of white-light continuum generation devices is built with a sapphire crystal as the medium.

Under different incident pulse energies, the white-light continuum spectrum generated by a femtosecond laser focused on sapphire crystal through a 40 mm spherical lens is measured.

The relationship between white-light continuum spectral intensity and spectral range as well as incident pulse energy is thoroughly investigated. Then, under the conditions of an achromatic lens and a spherical lens with a focal length of 40 mm, the most stable white-light continuum spectra are compared and studied. Then, the white-light continuum spectra produced by the achromatic lens and spherical lens with focal lengths of 40 and 100 mm, respectively, are compared and analyzed and the stability of four white-light continuum spectra is compared. Finally, a series of experimental transient absorption devices are constructed.

In the transient absorption experiment of Rhodamine B sample, the white-light continuum generated under the aforementioned four conditions is used as the probe pulse.

Results and Discussion The white-light continuum spectrum widens to the blue edge with the increasing incident pulse energy; furthermore, the spectral width increases.

With the increasing incident pulse energy, the spectral intensity near 625 nm wavelength steadily declines. The range of the spectrum will no longer fluctuate and the blue shift will disappear once the incident pulse energy reaches a particular value. The fundamental explanation for this change, according to our analysis, is that the Kerr self-focusing effect and plasma defocusing effect maintain a particular balance (Fig. 5). We find that the achromatic lens has a novel blue shift compared with the spherical lens in generating white light spectrum; however, the overall intensity of the white light generated by the achromatic lens is weaker than that generated by the spherical lens (Fig. 6). It is because the focal spot radius of the achromatic lens is smaller than that of the spherical lens, the photon density of the spot at the focal point is larger, and the energy is more concentrated, resulting in the blue shift of the spectrum (Table 1).

Furthermore, the achromatic lens' focal length little affects the spectral range of the generated white light,

whereas the spherical lens' focus length has a considerable effect (Fig. 7). Furthermore, we discover that the achromatic lens with a focal length of 40 mm and the white light spectrum generated by the spherical lens are both relatively steady, with a small overall jitter of the spectrum (Fig. 8). Finally, for Rhodamine B, which has a weak excited state absorption signal in transient absorption spectroscopy, the experimental results corresponding to 40 and 100 mm achromatic lens are better (Fig. 9).

Conclusions In this study, a white light generation device based on four different lenses is constructed according to the principle of white-light continuum generation and the different focusing characteristics of the achromatic lens and spherical lens at the focal position are discussed. Through theoretical simulation and experimental demonstration, it is concluded that: 1) a more blue-shifted white-light continuum can be achieved using an achromatic lens. When the beam is focused, the achromatic lens can considerably reduce the influence of dispersion, resulting in a smaller focal point radius and uniform photon distribution. When focusing on the sapphire crystal, the photon density at the focal spot is higher than that in the spherical lens at the same energy and the blue shift is visible. 2) Using a short focal lens will afford a blue shift and better spectral stability of the white-light continuum. For the same lens, different focal length affords different focal spot radii and depths at the focus position. When acting on sapphire crystal, the white-light continuum generated by a short focal lens has an obvious blue shift because the short focal lens can afford highly focused energy and uniform photons compared to a long focal lens. Because the short focal lens operating range is shorter and the monofilament channel created in the sapphire crystal is more stable, the white-light continuum has superior stability. The transient absorption of Rhodamine B was studied using four different types of white-light continuum-generating equipment. The blue-shifted white-light continuum is found to be more useful for measuring Rhodamine B's stimulated absorption signal. Therefore, in a transient absorption experiment, a short-focal achromatic lens can be used to assess Rhodamine B sample.

Key words nonlinear optics; femtosecond laser; white-light continuum; transient absorption