

利用 CARS 方法研究超短脉冲 激光的脉冲宽度

耿纪宏* 陈道阳 李郁芬
(复旦大学物理系, 上海 200433)

王 润 文
(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

提 要

在理论上提出了利用两光束 CARS/CSRS 方法测量超短脉冲激光的三阶相关函数。实验上在几种样品中测量了 CARS/CSRS 的时间特性, 得到了泵浦光脉冲, SCDL 输出光脉冲以及受激喇曼散射光脉冲的宽度。

关键词: 超短脉冲, 相干反斯托克斯-喇曼散射, 受激喇曼散射, 超短激光腔。

一、引 言

自从超短脉冲激光出现以来, 人们已经发展了多种测量超短脉冲激光的方法和技术。通常使用的非线性测量方法有 TPF 法^[1], SHG 法^[2]等。这些方法都是通过对激光强度的二阶自相关函数的测量, 来得出激光脉宽的信息。条纹照相机^[3]的出现为超短脉冲激光的研究提供了更加有力的工具。本文首次提出利用两光束皮秒 CARS 及 CSRS 的方法测量超短脉冲激光的三阶相关函数, 来研究超短脉冲的时间特性。

二、原 理

CARS 过程是一个非线性光波耦合过程, 即频率为 ω_{L1} 和 ω_S 的两束激光在喇曼介质中耦合出分子体系的振动振幅 Q_V ; 这个相干振动激发然后同 ω_{L2} 激光耦合, 从而产生出相干辐射 ω_{AS} , 耦合波方程的描述为

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{C^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon \mathbf{E}) = \frac{4\pi}{C^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL} \quad (1)$$

采用 Placzek 模型^[4]来描述非线性介质, 非线性极化强度 \mathbf{P}_{NL} 与振动振幅 Q_V 和激光电场成正比关系

$$\mathbf{P}_{NL} = N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q_V} \right) Q_V \mathbf{E} \quad (2)$$

这里 $\left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q_V}\right)$ 为一常数, 它表示光极化率随振幅 Q_V 的变化系数。 N 为分子密度。

按照 Placzek 模型, 作用在振子 Q_V 上的作用力为 $F = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q_V}\right) E^2$, 所以振子 Q_V 的运动方程为

$$\frac{\partial^2 Q_V}{\partial t^2} + \frac{1}{T_2} \frac{\partial Q_V}{\partial t} + \omega_V^2 Q_V = \frac{1}{2m} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q_V}\right) E^2 \quad (3)$$

其中 T_2 为振幅 Q_V 的弛豫时间, 即振动失相时间, ω_V 为振动模的频率, $\omega_V = \omega_L - \omega_S$ 。

考虑到在相干喇曼过程中, 振子 Q_V 的激发是泵浦光 ε_L 和 Stokes 光 ε_S 共同作用的结果, 所以介质中总的电场 $\varepsilon = \varepsilon_L + \varepsilon_S$ 。在平面波近似和慢变化振幅近似下, 并作时间空间变换 $z' = z$, $t' = t - z/v$, 可以得到

$$\begin{cases} \frac{\partial E_S}{\partial z'} = -ik_2 Q_V^* E_{L1}(t'), & (4) \\ \frac{\partial Q_V}{\partial t} + \frac{1}{T_2} Q_V = ik_1 E_{L1} E_S^* & (5) \end{cases}$$

其中 $k_1 = \frac{N}{2\omega_V} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q_V}\right)$, $k_2 = \frac{2\pi N \omega_S^2}{C^2 k_S} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q_V}\right)$ 为两常数。 T_2 为失相时间, 即非线性介质的横向弛豫时间。由方程(5)式可以得到 E_{L1} 和 E_S 所激发的振动振幅为

$$Q_V(t) = ik_1 \int_{-\infty}^t E_{L1}(t') E_S^*(t') e^{(t'-t)/T_2} dt' \quad (6)$$

CARS 信号, 即相干反 Stokes 喇曼信号 $|E_{AS}|^2$, 实际上是由振动振幅 Q_V 与另一延迟的泵浦激光 $E_{L2}(t-t_D)$ 耦合作用的结果^[5]。 t_D 为两脉冲光的延迟时间。因此, CARS 信号强度

$$\begin{aligned} I_{\text{CARS}}(t_D) &= \int_{-\infty}^{\infty} |E_{AS}|^2 dt = \int_{-\infty}^{\infty} |E_{L2}(t-t_D)|^2 |Q_V(t)|^2 dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dt |E_{L2}(t-t_D)|^2 \left[\int_{-\infty}^t E_{L1}(t') E_S(t') e^{(t'-t)/T_2} dt' \right]^2 \end{aligned} \quad (7)$$

如果两个泵浦激光光子来源于同一光束, 并且该光束与 Stokes 光束延迟 t_D , 很明显, 这时的 CARS 信号为

$$Q_{\text{CARS}}(t_D) = \int_{-\infty}^{\infty} dt |E_L(t-t_D)|^2 \left[\int_{-\infty}^t E_L(t'-t_D) E_S(t') e^{(t'-t)/T_2} dt' \right]^2 \quad (8)$$

通常, 凝聚态介质的失相时间都在皮秒到飞秒量级之间, 而许多超短脉冲激光的脉宽比 T_2 宽。考虑这种近似情况, 即激光脉宽大于失相时间 T_2 时, 那么(8)式作近似计算

$$\begin{aligned} I_{\text{CARS}}(t_D) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt |E_L(t-t_D)|^2 \left[\int_{-\infty}^{t-T_2} E_L(t'-t_D) E_S(t') e^{(t'-t)/T_2} dt' \right. \\ &\quad \left. + \int_{t-T_2}^t E_L(t'-t_D) E_S(t') e^{(t'-t)/T_2} dt' \right]^2 \end{aligned}$$

相对来说, 由于 T_2 很小, 上面括号里第一个积分中的指数衰减特别大, 以致于第一个积分趋于零。对于第二个积分, 在 $t-T_2$ 到 t 这一瞬间 (T_2 很小), $E_L(t'-t_D)$ 和 $E_S(t')$ 的变化可以忽略, 因此可以提到积分号外面, 所以上式变为

$$\begin{aligned} I_{\text{CARS}}(t_D) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt |E_L(t-t_D)|^2 \left[E_L(t-t_D) E_S(t) \int_{t-T_2}^t e^{(t'-t)/T_2} dt' \right]^2 \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} |E_L(t-t_D)|^4 \cdot |E_S(t)|^2 dt \end{aligned}$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} I_L^2(t-t_D) I_S(t) dt. \quad (9)$$

可见,两光束 CARS 的时间特性反映的是泵浦光和 Stokes 光之间的三阶相关关系。

同样的计算可以应用于两光束的皮秒 CSRS 过程,类似的结果是

$$I_{\text{CSRS}}(t_D) = \int_{-\infty}^{\infty} I_L(t-t_D) I_S^2(t) dt. \quad (10)$$

因此,我们可以利用(9)、(10)式中的这种相关关系来研究超短脉冲激光的时间特性。

三、实验装置及实验结果

众所周知,CARS 技术中的泵浦光 ω_L 和 Stokes 光频率 ω_S 之差必须同样品的喇曼模匹配。在我们的实验中,使用 Quantel 公司的主被动锁模 Nd:YAG 激光器的倍频光作为 CARS 技术中的泵浦光 ω_L ,而 ω_S 则采用两种方法:由锁模 Nd:YAG 激光器的倍频光泵浦

一台超短腔染料激光器 SCDL (Short cavity dye laser) 输出的可调谐皮秒激光^[3],或者由锁模 Nd:YAG 的倍频光在喇曼介质中产生的受激喇曼散射光。

图 1 所示就是泵浦 SCDL 系统进行皮秒 CARS 测量的实验装置。超短腔染料激光 (SCDL) 系统是由一个腔长很短(几个 μm 到几百个 μm) 的可调谐振腔和两个放大级组成,使用不同的染料,由它可以产生波长在 565 nm~640 nm 范围内调谐的皮秒脉冲激光。我们将它作为 CARS 中的 ω_S 光。分别对 CH_4 、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ 及 $\text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$ 样品中几个不同振动模的 CARS 光谱进行了测量。结果表明,SCDL 系统在皮秒激光光谱实验研究方面具有很大的实用价值。按照图 1 的装置,在相位匹配和相同光程的条件下,经过单色

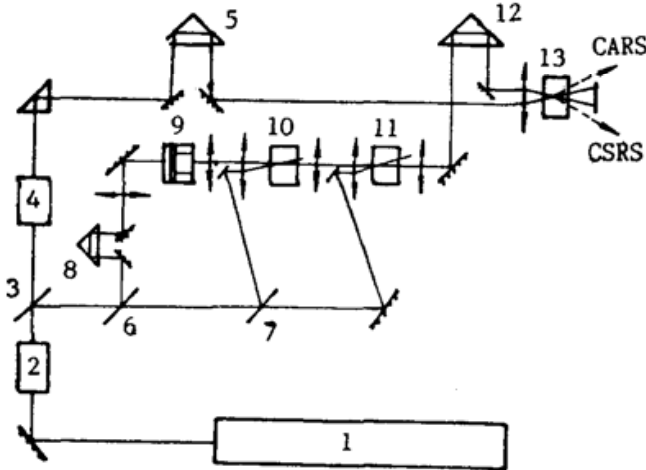


Fig. 1 The experimental set-up

- 1—mode-locked Nd:YAG laser
- 2, 4—KDP crystals
- 3—dichroic mirror
- 5, 8—fixed delay lines
- 6, 7—beam splitter
- 9—short cavity dye laser
- 10, 11—dye amplifier
- 12—variable delay line
- 13—nonlinear sample

仪用光电倍增管接收 CARS 信号,并送到 Boxcar 中进行处理。通过扫描光学延迟线 VD,就可得到皮秒 CARS 的时间特性。我们在两入射光束的另一边还可以同时测量到皮秒 CSRS 的时间特性。

本文对 CH_4 、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ 和 $\text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2$ 三种样品进行了皮秒 CARS 测量,延迟线采用逐点扫描的方式,这样可以将 Boxcar 的积分常数取得较长,从而增加平均次平(几千个脉冲平均),减小信号噪声。由于上述三种样品的喇曼振动模各不相同(分别是 2917 cm^{-1} , 2928 cm^{-1} , 1345 cm^{-1}),所以 SCDL 系统处于三种不同的波长输出状态。将测量到的三种样品的皮秒 CARS 随两入射光脉冲延迟时间 t_D 的变化示于图 2 中的曲线 a, b, c。用高斯函数分别对它们进行了拟合(“×”点为实验点,实线为拟合曲线),得到三个高斯函数的半

宽度分别为 40 ps, 41 ps 和 42 ps, 三个数值基本一致, 说明两光束皮秒 CARS 谱与样品基本无关。这与理论分析一致。

对于 $C_6H_5NO_2$ 样品, 在测量其皮秒 CARS 的同时还测量了位于另一边的皮秒 CSRS 时间曲线, 见图 2 中曲线 d。用高斯函数拟合出它的半宽度为 57 ps, 比 CARS 信号的 42 ps 宽。这是由于 SCDL 系统输出的染料激光 I_s 对泵浦光的脉冲压缩效应所致。利用 (9)、(10) 式可以推算出泵浦光 (532 nm) 和染料激光的脉宽 τ_L, τ_S 。假设入射光脉冲形状为高斯型, $I_i \propto \exp[-(4 \ln 2)t^2/\tau_i^2]$ ($i=L, S$) 则 (9)、(10) 式变为 $I_{CARS}(t_D) \propto \exp[-(4 \ln 2)t_D^2/(\tau_L^2/2 + \tau_S^2)]$, $I_{CSRS}(t_D) \propto \exp[-(4 \ln 2)t_D^2/[(\tau_L^2 + \tau_S^2)/2]]$ 。由此得到泵浦光脉宽为 $\tau_L = 56$ ps, 染料光脉宽 $\tau_S = 14$ ps, 即 SCDL 系统对泵浦光脉冲的压缩比为 1:4, 是合乎实际的^[7]。

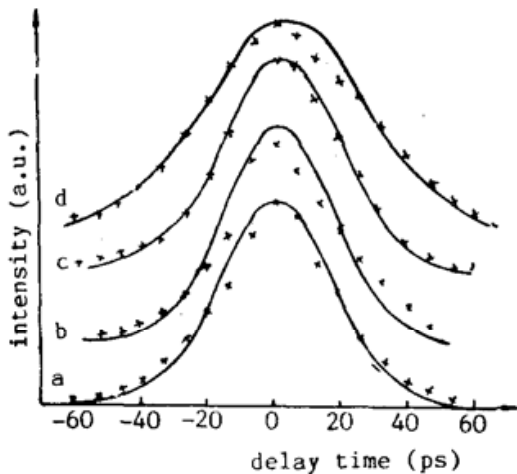


Fig. 2 CARS or CSRS signal intensities versus the delay time between two incident beams (I_s beam is from the SCDL system). The crosspoints show the experimental values. The solid curves show the Gaussian fitting functions.

- a— CH_4 $\tau_{CARS} = 40$ ps.
- b— C_2H_5OH $\tau_{CARS} = 41$ ps
- c— $C_6H_5NO_2$ $\tau_{CARS} = 42$ ps
- d— $C_6H_5NO_2$ $\tau_{CSRS} = 57$ ps

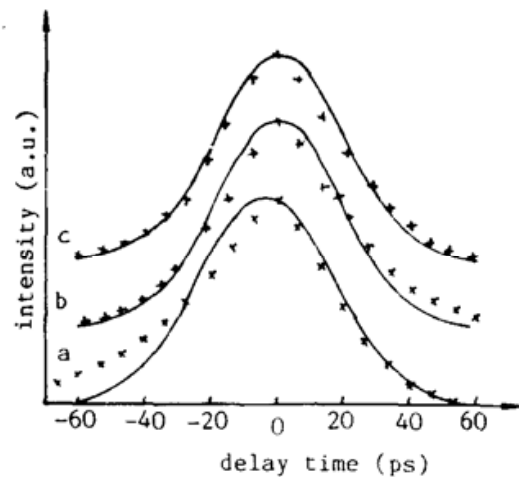


Fig. 3 CARS signal intensities of CH_4 and C_2H_5OH using Raman scattering versus the delay time between two incident beams

- a— CH_4 $\tau_{CARS} = 47$ ps,
- b— C_2H_5OH $\tau_{CARS} = 43$ ps,
- c— CH_4 $\tau_{CARS} = 44$ ps

其次, 利用泵浦激光 (532 nm), 在 CH_4 气体和 C_2H_5OH 液体中产生受激喇曼散射 (SRS), 用红色滤色片取出其中的一级 Stokes 散射光, 将它作为 CARS 技术中的 Stokes 光 ω_s 。信号的产生, 接收和处理过程与图 1 中的方式相同。我们分别测量了用 CH_4 的 SRS 光在 CH_4 样品中的 CARS, C_2H_5OH 的 SRS 光在 C_2H_5OH 中的 CARS。另外, 由于 CH_4 和 C_2H_5OH 两种样品的喇曼模相差很小, 而 C_2H_5OH 喇曼模的宽度却大到足可覆盖这一差距, 所以我们还测量到了用 C_2H_5OH 的 SRS 光在 CH_4 气体样品中产生的 CARS。这三种情况下的实验结果分别见图 3 中的曲线 a, b, c。用高斯函数去拟合, 得到了它们的半宽度分别为 47 ps, 43 ps, 44 ps。曲线 b 和 c 的相似性再一次说明 CARS 谱与样品无关, 它是入射光的三阶相关曲线。如果泵浦光脉宽按 56 ps 计算, 可以推算出 CH_4 和 C_2H_5OH 的一级 Stokes 的 SRS 光的脉宽分别为 25 ps 和 16 ps。由此也可以看出, 受激喇曼散射对泵浦激光的脉冲压缩效应特别明显。

四、讨 论

由于皮秒相干喇曼散射是入射光的三阶相关函数。根据(9)式和(10)式,通过测量皮秒 CARS 和 OSRS 的相关波形,原则上可以得到有关两个入射光脉冲形状的信息。同 TPF 法和 SHG 法相比这也许是该方法的一个最大优点。需要指出的是,由于 CARS 和 OSRS 信号经过了许多个脉冲的平均,所以由此而得的波形信息也是许多脉冲的平均效果,而非单个激光脉冲的波形。

参 考 文 献

- [1] J. A. Giordmaine *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1967, **11**, No. 7 (Oct), 216.
- [2] M. Mased *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1966, **17**, No. 22 (Nov), 1275.
- [3] D. J. Bradley *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1975, **27**, No. 7 (Oct), 382.
- [4] G. Placzek; «Handbuck der Radiologie», (Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1934), 209.
- [5] A. Laubereau, W. Kaiser; *Rev. Mod. Phys.*, 1978, **50**, No. 3 (Jul), 631.
- [6] B. Fan, T. K. Gustafson; *Appl. Phys. Lett.*, 1976, **28**, No. 4 (Feb), 202.
- [7] A. J. Cox, G. W. Scott; *Appl. Opt.*, 1984, **23**, No. 8 (Apr), 1135.

Investigation on temporal features of ultrashort pulses using CARS technique

GONG JIHONG, CHEN DAOYANG AND LI YUFEN
(Fudan University, Physics Department, 2000433)

WANG RENWEN
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 18 September 1990; revised 23 November 1990)

Abstract

Third-order correlation function for the measurement of ultrashort laser pulse using a two-beam CARS or OSRS technique was proposed theoretically. The temporal features of two-beam CARS or OSRS in several samples have been measured. The durations of the pumping pulse, the output pulse of SCDL and the stimulated Raman scattering pulse were determined experimentally.

Key words: ultrashort pulse, Coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS), short cavity dye laser (SCD), stimulated Raman scattering (SRS).