

文章编号: 0253-2239(2009)09-2635-05

氩气中飞秒超强紫外激光成丝的实验研究

王燕玲 周绪桂 吴 洪 戴小民 丁良恩

(华东师范大学物理系精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

摘要 中心波长 808 nm, 脉宽 70 fs 的钛蓝宝石激光系统三倍频后产生的中心波长 268 nm、带宽 1.5 nm、单脉冲能量 0.58 mJ 的紫外超快激光光源经凹面镜聚焦后注入到样品池氩气中, 由强场非线性效应诱导形成了等离子体通道, 并对紫外激光脉冲光谱进行展宽。实验着重研究了 268 nm 波段的紫外激光成丝特点, 以及在不同气体压强、聚焦长度、气体种类等条件下紫外光丝对光谱的调制作用。在 2.2×10^5 Pa 氩气气压、焦距 1000 mm 条件下, 可以获得光谱宽度 3.3 nm, 加宽为入射紫外脉冲的 2.2 倍。实验观察到压强和聚焦长度的增加都有利于等离子体通道的增加, 有利于光谱展宽。紫外激光诱导的等离子体通道为在紫外波段内获得极端超快激光脉冲提供了有效的途径。

关键词 超快光学; 频谱展宽; 非线性效应; 等离子体通道

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20092909.2635

Experimental Research of Ultraviolet Filamentation of Intense Femtosecond Laser in Ar Gas

Wang Yanling Zhou Xugui Wu Hong Dai Xiaomin Ding Liang'en

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, Department of Physics, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract The ultrafast ultraviolet(UV) laser source with central wavelength of 268 nm, spectrum width of 1.5 nm and single pulse energy of 0.58 mJ which is obtained by third harmonic generation of Ti:sapphire laser system with pulse duration of 70 fs and central wavelength of 808 nm can generate a plasma channel due to the nonlinear effect when it is injected into Ar gas cell after focusing. We studied the filament feature of UV laser at 268 nm and the modulation of spectrum by UV filament under the condition of different gas pressure, focal length and gas category. The spectrum width of 3.3 nm can be obtained with 2.2 atm Ar pressure and 1000 mm focal length which is a factor-of-2.2 improvement compared with input spectrum. We observed that both the increase of gas pressure and focal length are beneficial to the increase of plasma channel length and spectrum broadening. The plasma channel induced by UV pulses could provide a valid approach for attaining extremely ultrafast pulses in the UV range.

Key words ultrafast optics; spectrum broadening; nonlinear effects; plasma channel

1 引 言

近年来,随着飞秒激光技术的飞速发展,超短超强激光与物质的相互作用产生了很多有趣的现象,比如原来只有在固体、液体中才能产生的各种复杂的非线性现象,现在也可以在气体中实现,从而导致

脉冲特性在空间(自聚焦,自导引,自反射)、光谱(四波混频,自相位调制)和时域(脉冲自陡峭,脉冲分离)等特性发生很大变化。飞秒激光在气体中传输时,可以形成直径只有几百到几十微米的等离子体通道-光丝^[1~3]。因为光脉冲在自导引传输过程中

收稿日期: 2008-12-16; 收到修改稿日期: 2009-01-15

基金项目: 国家 973 计划(2006CB0806001)、教育部长江学者和创新团队发展计划和上海市重点学科建设 B408 资助项目。

作者简介: 王燕玲(1979—),女,博士研究生,主要超快强激光技术方面的研究。E-mail: ylw532@hotmail.com

导师简介: 丁良恩(1949—),男,研究员,博士生导师,主要从事超快强激光技术和量子信息光学等方面的研究。

E-mail: leding@phy.ecnu.edu.cn(通信联系人)

具有保持高功率以及瞬态结构不变的特点,所以它不仅对激光与物质作用研究有重要的理论意义,而且在军事、工业等领域尤其是在激光雷达和飞秒激光成丝诱导云层放电等方面具有诱人的应用前景。

1994年, Mourou 工作组在密西根大学的实验室中用 200 fs, 10 GW 的脉冲激光模拟脉冲微波雷达时,首次发现激光脉冲充当自己的波导在空气中传输了几十米的距离^[4],为激光传输开辟了新领域。现在飞秒激光脉冲在空气中所产生的光丝传播距离早已经超过数百米^[5],比如能够在空气中垂直飞行 12 km^[6]。除此之外,伴随着光丝的出现也产生了一些十分有趣的现象,如锥角辐射^[5]、自相位调制、光谱蓝移、多光子电离、等离子体吸收、超连续白光的产生^[7]、高转换效率三次谐波的产生^[8]等。这些丰富新奇的现象越来越引起各国科学家们的重视,使飞秒激光在气体中的传输与相互作用研究逐步成为超强超快激光领域的重要课题。

迄今为止大部分气体成丝实验大都采用 800 nm 波段的近红外超快激光^[4,5],而紫外波段成丝实验主要局限在能够直接输出 248 nm 的氟化氩激光^[9~11],这是因为紫外其他波段飞秒激光多采用非线性频率转换技术获得,而受相位失配和群速度色散影响,非线性转换效率不高,难以产生高强度的谐波。本文着重研究输出中心波长为 808 nm 的钛蓝宝石激光器经过三倍频后产生的 0.58 mJ 紫外飞秒脉冲聚焦成丝后在气体中的非线性传播规律。分析了中心波长为 268 nm 的紫外激光成丝特点及其对光谱的调制,这对于在紫外波段内获得极端超快激光脉冲提供了有效的途径,对产生新的高次谐波驱动源具有指导意义。

2 紫外超快激光成丝特性

2.1 光丝形成机制

超短脉冲强激光在气体中传输时,由于光克尔效应会使光束非线性自聚焦,导致光功率密度增大,气体分子电离产生等离子体,而等离子体又会对光束产生散焦作用,同时在传播过程中光束会出现衍射,也具有散焦作用。当克尔自聚焦,等离子体散焦以及衍射散焦三者达成平衡时,就可以使激光在空气中形成等离子体通道,即光丝。只有当入射光功率密度高于阈值功率

$$P_{cr} = \frac{\lambda^2}{2\pi n_0 n_2}, \quad (1)$$

时脉冲激光才有可能产生克尔自聚焦,使介质发生

光致电离,产生等离子体细丝。例如 800 nm 激光在空气中产生等离子体通道的 $P_{cr} = 3 \text{ GW}^{[12]}$ 。由(1)式可知,同样条件下,267 nm 的紫外激光成丝阈值会比 800 nm 的红外波段小约一个数量级,这说明对于紫外光脉冲而言成丝的能量要求大大降低。

2.2 等离子体细丝对光谱调制的机制

飞秒强激光脉冲在非线性介质中传输时会引起空间和时间调制,导致光谱发生变化。这通常认为是自相位调制、四波混频和等离子体通道等非线性过程共同作用的结果。自相位调制主要是由于非线性折射率 n_2 造成的。总折射率 n 与激光强度 $I(t)$ 及相位 φ 的关系如下:

$$n = n_0 + n_2 I(t), \quad (2)$$

$$\varphi = kzn, \quad (3)$$

其中 k 为波矢的值。当入射光强度变化时,会引起折射率改变,导致相位延迟也发生变化。而光频 $\Delta\omega = -d\varphi/dt$,由此可知在脉冲上升沿部分, $I(t)$ 随时间增大, $\Delta\omega < 0$, 频谱红移。同理,在脉冲下降沿部分频谱蓝移,最终使得光谱得到展宽。

除自相位调制外,等离子体通道中的自由电子也会影响频谱宽度。自由电子对折射率的影响为: $\Delta n_p = -\omega_p^2/2\omega^2$, 其中 ω_p 为等离子体频率 $\omega_p = [4\pi e^2 N_e(I)/m_e]^{1/2}$, N_e 为等离子体密度,此处由等离子体引起的相位变化为 $\Delta\varphi = -\frac{\omega_p^2}{2\omega^2} \frac{2\pi}{\lambda} L$, 频率变化为 $\Delta\omega = -\frac{\partial\Delta\varphi}{\partial t} = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{4\pi e^2}{2m_e\omega^2} \frac{\partial N_e}{\partial z}$ 。在慢变振幅近似下,激光脉冲在时间上可分成很多层,不同的层聚焦在各自的焦点上,激光脉冲后沿的“每一层”遇到的是突然增加的电子密度,也就是 $(\partial/\partial z)N_e(z) > 0$, 结果就造成光谱在短波方向展宽。在等离子体细丝末端,电子密度缓慢减少,使得频率相应减小,造成长波方向有所展宽。

另外,若新产生的频谱与基频光满足相位匹配时,非线性效应四波混频会使频谱得到进一步展宽。

3 实验装置及讨论

实验装置如图 1 所示,采用改造过的商用钛蓝宝石飞秒激光系统做激光光源,该系统由脉宽 10 fs 的振荡源 (Compact Pro, Femtolasers GmbH),自建展宽器^[13]和 TSA-25 系统 (Spectra-Physics TSA) 中的再生放大器、两通放大器及压缩器组成。该系统输出激光重复频率为 10 Hz,中心波长为 808 nm,脉冲宽度为 70 fs。实验采用光斑直径为

7 mm、单脉冲能量为 13 mJ 的激光束,经过级联的 0.2 mm 厚的 BBO 晶体三倍频后获得强度为 0.58 mJ 的紫外激光脉冲,中心波长为 268 nm(光谱图如图 2 所示),光谱宽度约为 1.5 nm。其中 BBO(1)为倍频晶体,用于产生中心波长 404 nm 的二次谐波,倍频过程为 I 类相位匹配;BBO(2)为补偿片,主要对基波和二次谐波之间的群速度走离进行补偿,并且能够影响到光波的偏振方向,使基波光偏振方向旋转近 90° ;BBO(3)为和频晶体,产生 268 nm 的三次谐波,该和频过程亦为 I 类相位匹配。实验中利用若干波长为 267 nm 的高反镜($M_2 \sim M_6$)将三倍频后残留的基波和二倍频波滤去,然后将紫外

激光束分别经焦距为 500 mm,750 mm,1000 mm 的凹面镜(M7)聚焦后注入到长度为 1.5 m 充有不同气压的氩气样品池中,使用凹面镜聚焦的目的是为了避免由于透镜而引入的材料色散。样品池窗口出射的紫外激光脉冲采用 Ocean Optics 公司生产的光纤光谱仪 HR2000(分辨率 0.5 nm)进行光谱测量、Coherent 公司 LABMAX_TOP 激光功率/能量计进行能量探测。我们着重改变聚焦镜的焦距和气压等条件研究各种状态下等离子体细丝的成丝特点及其对光谱宽度调制的影响,可以观察到不同条件下等离子体细丝对光谱出现不同程度的展宽。

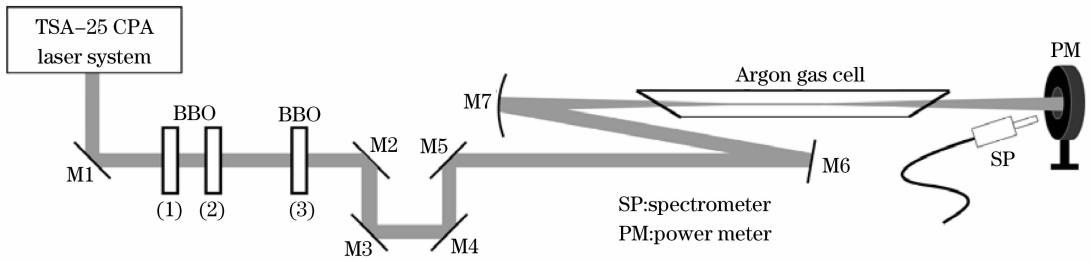


图 1 实验装置图

Fig. 1 Schematic of the experimental setup

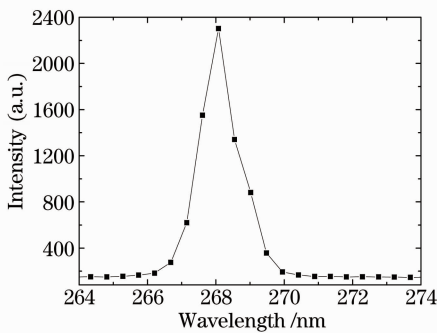


图 2 三次谐波光谱图

Fig. 2 Spectrum of third harmonic

3.1 气体压强对成丝的影响

当紫外激光脉冲经 $f=1000$ mm 的凹面镜聚焦,并在 $0 \sim 2.2 \times 10^5$ Pa 范围内改变氩气气压大小时,可以在样品池中观察到光丝从无到有,每间隔 0.2×10^5 Pa 取样一次,得到丝长与气压关系如图 3(a)中矩形实线所示。丝长随气压增加而增加,气压较大时细丝亮度较亮,当气压很小时,样品池中未能观察到光丝产生,当气压增加至 0.6×10^5 Pa 时,可观察到光丝长度 7 cm,从聚焦镜后 84 cm 位置起始,91 cm 位置截止。当气压为 2.2×10^5 Pa 时,丝长增加为 15 cm,从聚焦镜后 80 cm 处起始,95 cm 处截止。实验中换用 $f=750$ mm 和 $f=500$ mm 的凹面镜聚焦,得到的光

丝长度与气压关系如图 3 中点实线和星虚点线所示。可以看到焦距 500,750,1000 mm 分别在 0.2×10^5 , 0.4×10^5 , 0.6×10^5 Pa 气压下观察到光丝产生,这是由于短焦情况下,更容易达到阈值功率临界值,从而形成等离子体通道。

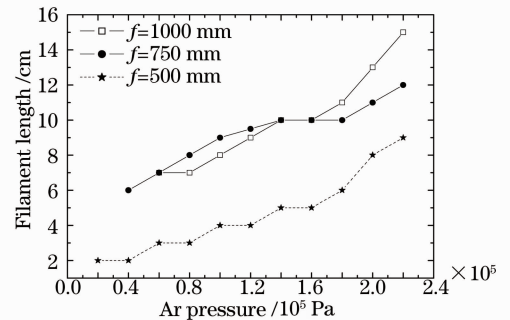


图 3 光丝长度与氩气气压的关系

Fig. 3 Dependence of filament length on Ar pressure

除光丝长度外,样品池后紫外光谱宽度也随着气压变化而变化,如图 4 所示。可以看出较高压强相对于较低压强更有利于光谱展宽,当气压小于 1×10^5 Pa 时光谱变化不大,但当气压大于此值后,压强对光谱的展宽作用变得显著起来。光谱宽度从无气压状态下 1.5 nm 展宽为 2.2×10^5 Pa 状态下的 3.2 nm,增加至原光谱宽度的 2.2 倍。由此可知

若压强越大,则光纤长度越长、亮度越亮、光谱宽度越宽,这主要是因为气体压强越大,相当于非线性系数加大,非线性效应加强,自相位调制对光谱展宽的影响就会越明显。

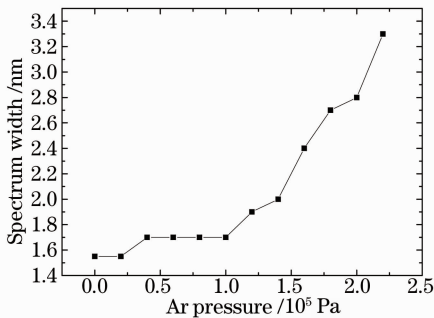


图4 光谱宽度与氩气气压关系

Fig. 4 Dependence of spectrum width on Ar pressure

实验中当气压改变时,在样品池后测量的紫外光能量大小变化很小,说明本实验条件下尽管光纤长度和亮度不同,但是产生等离子体通道消耗的能量相差不多,反映了光纤形成后其能量损耗应维持在一定数值基本不变。

3.2 聚焦长度对成丝的影响

为研究光纤及其光谱宽度受聚焦长度的影响,实验中将紫外脉冲光分别用焦距为 500, 750, 1000 mm 的凹面镜聚焦后通入充有 2.2×10^5 Pa 氩气的样品池中。聚焦后可以观察到等离子体细丝的长度各不相同,分别为 9, 12, 15 cm。焦距越长,等离子体细丝长度也越长,500 mm 聚焦后的亮度最亮,750 mm 次之,1000 mm 相对较弱。等离子通道的亮度表征了离子-电子复合的强度,反映了光纤中的电离程度。在短焦条件下,光纤中的功率密度较高,引起的多光子电离也更显著,进而导致更强的光纤亮度。

我们记录三种焦距状态下的细丝对紫外光谱的影响,如图 5 所示。聚焦以前光谱宽度只有约 1.5 nm,焦距为 500 mm 时,频谱宽度为 2.6 nm (266.5~269.1 nm),光谱中心蓝移了约 0.3 nm,焦距为 1000 mm 时谱宽增加至 3.3 nm (266.4~269.7 nm),成丝对光谱的影响主要因为一方面脉冲上升沿受到的自相位调制使其向长波方向展宽,下降沿受自相位调制向短波方向展宽,另一方面脉冲传输过程中不断产生的等离子体能够使脉冲向短波方向展宽。可以看出,焦距越长,光谱展宽就越明显。这是因为焦距越长,等离子体通道越长,相当于自相位调制的范围越大,因而对光谱就有较大影响,

并且由于焦距越长,光束会聚和发散的角度越小,就更容易满足四波混频相位匹配条件,这也会导致频谱宽度增加。

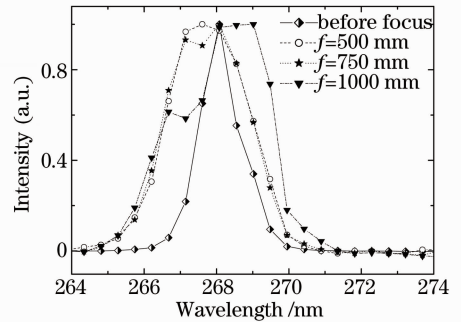


图5 光谱宽度与焦距的关系

Fig. 5 Dependence of spectrum width on focal length

3.3 光纤直径特点

实验中将紫外脉冲用 $f=500$ mm 平凹镜直接在空气中聚焦,焦点前 2 cm 处观察到光斑情况如图 6 所示,出现很明显的多丝现象,情况变得更加复杂。



图6 多丝情况的光斑图

Fig. 6 Light spot of multifilament

为避免形成多丝,先用光阑将紫外光直径减小至 2.5 mm,然后仍用 $f=500$ mm 平凹镜在空气中聚焦形成等离子体细丝,此时对应的能量为 0.22 mJ。在焦点附近不同位置处放置玻璃片分别烧蚀 10 s,在烧蚀中心可以观测到一个小凹坑。图 7(a)所示为焦点位置处的截面,图 7(b)为焦点前 7.5 cm 处的截面。此段范围内测量中心的直径均约为 $90 \mu\text{m}$,随距离并无显著变化。而根据高斯光束在空气中的传播规律可计算出经 500 mm 聚焦镜聚焦后,在焦点前 7.5 cm 处光斑直径约为 $140 \mu\text{m}$ ($>90 \mu\text{m}$),由此可知 $90 \mu\text{m}$ 直径是入射光束与气体非线性作用产生等离子体通道所形成的。其中外围浅色部分为能库的影响使玻璃熔融,这部分能量虽然不弱,但是功率密度较低。继续收缩光阑,当紫外激光脉冲能量减小到约 0.08 mJ 时,空气中的光纤已经基本无法观察到,此时光斑直径为 1.4 mm。

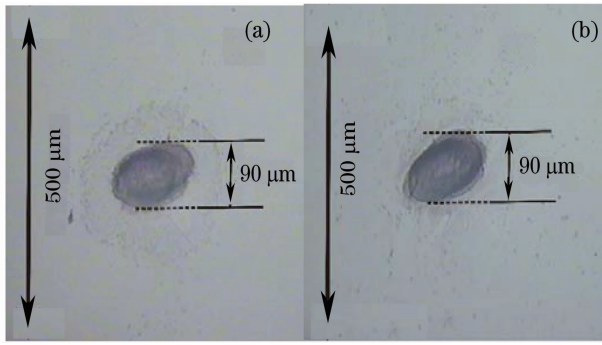


图7 光斑横截面 (a)焦点位置 (b)焦点前 7.5 cm 位置

Fig.7 Cross section of light spot (a) in the focus plane (b) in the plane of 7.5 cm before focus

3.4 气体种类对成丝的影响

除上述所用氙气外,我们也使用氖气和氮气进行同样的实验,同样也能观测到光丝。其中氖气中的丝长度最短且亮度很弱,氙气较长,氮气最长。这是因为等离子体通道形成是由于超快强激光在气体中的非线性效应使其电离所产生的,而在这三种气体中氖气的电离阈值要高于氙气和氮气,故相对较难形成光丝现象。

4 结 论

对于飞秒紫外激光在气体中因非线性效应产生的等离子体通道进行了实验研究,发现紫外光源在气体中的阈值功率相对近红外波段下降一个数量级,更容易形成细丝,且细丝的长度、位置以及紫外光的频谱特征会受到气体压强,聚焦长度,脉冲能量等因素的影响。当压强越大时,光丝长度越长,亮度越亮,光谱宽度越宽;当聚焦长度越长时,丝长越长,光谱展宽越多,短焦比长焦情况光丝更亮。在 2.2×10^5 Pa 氙气气压、焦距 1000 mm 条件下,可以获得 268 nm 紫外激光脉冲谱宽 3.3 nm,光谱加宽为入射紫外脉冲的 2.2 倍。紫外激光诱导等离子体通道的光谱展宽作用对获得周期量级的紫外超短激光脉冲进而成为新的高次谐波驱动源等研究具有很好的参考价值。

致谢 感谢蔡炜颖老师对实验的支持和帮助。

参 考 文 献

- H. Schillinger, R. Sauerbrey. Electrical conductivity of long plasma channels in air generated by self-guided femtosecond laser pulses[J]. *Appl. Phys. B*, 1999, **68**(12), 753~756
- Zhang Liwen, Lin Chen¹, Xin Li *et al.*. Backscattering enhanced characteristics of supercontinuum emission from a self-guided filament in air[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(4): 519~523
张立文,林 晨,辛立 等. 空气中自导光丝超连续辐射后向散射增强特性[J]. *中国激光*, 2008, **35**(4): 519~523
- Zhu Jiabin, Ji Zhonggang, Deng Yunpei *et al.*. Study on lifetime of a plasma channel induced by femtosecond laser pulses and an external electric field[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(6): 1059~1062
朱佳斌,季忠刚,邓蕴沛 等. 外加高压电场下空气中激光等离子体通道寿命研究[J]. *光学学报*, 2007, **27**(6): 1059~1062
- Braun A, Korn G, Liu X *et al.*. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air [J]. *Opt. Lett.*, 1995, **20**(1): 73~75
- E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon *et al.*. Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air [J]. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(1): 62~65
- N. Aközbebek, C. M. Bowden, A. Talepour *et al.*. Femtosecond pulse propagation in air: variational analysis[J]. *Phys. Rev. E*, 2000, **61**(4): 4540~4549
- H. Yang, J. Zhang, Q. Zhang *et al.*. Polarization-dependent supercontinuum generation from light filaments in air [J]. *Opt. Lett.*, 2005, **30**(5): 534~536
- H. Yang, J. Zhang, J. Zhang *et al.*. Third-order harmonic generation by self-guided femtosecond pulses in air [J]. *Phys. Rev. E*, 2003, **67**(1): R15401
- Jens Schwarz, Jean-Claude Diels. Analytical solution for uv filaments [J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **65**(1): 013806
- Jens Schwarz, Jean-Claude Diels. Long distance propagation of UV filaments [J]. *J. Mod. Opt.*, 2002, **49**(11): 2583~2597
- Schwarz, J., Rambo, P., Diels, J. -C *et al.*. Studies on UV filaments in air [C]. *Conference on Quantum Electronics and Laser Science (QELS)-Technical Digest Series*, **2000**(5): 144~145
- N. Aközbebek, A. Iwasaki, A. Becker *et al.*. Third-harmonic generation and self-channeling in air using high-power femtosecond laser pulses [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **89**(14): 143901
- Hu Wanyue, Wang Eryu, Li Wenxue *et al.*. Aberration-free Stretcher based on concentric diffraction for sub-10 fs pulses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(1): 181~186
胡婉约,王二玉,李文雪 等. 适用于亚 10 fs 的共心衍射无像差展宽器[J]. *光学学报*, 2007, **27**(1): 181~186