

引用格式: WANG Peng, XUAN Yaping, XU Yilin, et al. Applications of Femtosecond Four-wave Mixing in Ultrafast and Ultraintense Laser Technology (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2022, 51(10):1014002

王鹏, 宣雅萍, 徐艺林, 等. 飞秒四波混频在超快超强激光技术中的应用(特邀)[J]. 光子学报, 2022, 51(10):1014002

※封底论文※

# 飞秒四波混频在超快超强激光技术中的应用(特邀)

王鹏<sup>1</sup>, 宣雅萍<sup>1,2</sup>, 徐艺林<sup>1,2</sup>, 申雄<sup>1</sup>, 黄舜林<sup>1,2</sup>, 刘军<sup>1,2</sup>, 李儒新<sup>1,2</sup>

(1 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, 中国科学院超强激光科学卓越创新中心, 上海 201800)

(2 中国科学院大学 材料与光电研究中心, 北京 100049)

**摘 要:** 超快超强激光可以在实验室创造出超快时间、超强电场、超强磁场、超高温及超高压等多种极端物理实验条件, 是当前拓展人类对物质世界认知最强有力的工具之一。在超快超强激光的发展过程中, 飞秒四波混频过程在多个方面都发挥着非常重要的作用。本文介绍了飞秒四波混频过程在超快超强激光中近年来的一些进展和应用, 系统总结了近年来利用级联四波混频、自衍射效应、瞬态光栅效应、四波光参量放大, 以及交叉偏振波产生等飞秒四波混频过程, 在宽带高对比度种子激光产生, 新颖同心多色涡旋/径向偏振飞秒超快光源构建, “四阶相关仪”等脉冲对比度单发测量仪研制, 以及脉冲形状宽度单发测量仪研制等方面的成果与进展。未来, 飞秒四波混频过程还可拓展到太赫兹和极紫外等波段, 继续为超快超强激光技术的发展做出重要贡献。

**关键词:** 四波混频; 超快激光; 超强激光; 脉冲测量

中图分类号: O437

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20225110.1014002

## 0 引言

超快超强激光通常是指具有亚皮秒以下脉冲宽度和百太瓦以上峰值功率的特殊光场。这种超短脉宽和超高峰值功率的光场可以在实验室中创造出多种极端物理实验条件, 比如超快时间、超强电场、超强磁场、超高温及超高压等, 甚至可以在实验室模拟只有在恒星内部、黑洞边缘和核爆中心才有的极端物理条件。超快超强激光是拓展人类认知的最重要的研究工具之一, 在某些方面甚至是不可替代的研究工具。目前, 超快超强激光已广泛应用于物理、天文、化学、生物、材料、医学及交叉学科等世界重要前沿科学领域, 并在工业、医疗、通信等重要领域也得到应用<sup>[1-5]</sup>。根据著名科学家 DANSON C N 的文献<sup>[1]</sup>, 当前国际上已经有几十台 PW 量级的超快超强激光, 输出峰值功率达 10 PW 的两个超快超强激光装置也已经投入运行, 它们分别是位于中国上海张江的羲和一号装置(Superintense-Ultrafast Laser Facility, SULF)和欧洲极强光设施计划(Extreme Light Infrastructure-Nuclear Physics, ELI-NP)装置<sup>[6,7]</sup>。此外, 国内的中物院八所联合广东中山市、清华大学联合郑州大学、北京大学、上海交通大学等也都有 1~10 PW 级超快超强激光的研制计划。近年来, 为了获得更高峰值功率的激光, 欧盟和多个国家都提出了研制 100 PW 量级的超快超强激光的计划。这些超快超强激光的聚焦光强有望达到  $10^{23} \sim 10^{24} \text{ W/cm}^2$ , 从而可以研究真空极化、反物质、暗能量、引力波、光核物理等国际基础物理的重大前沿课题。

在超快超强激光技术的发展过程中, 创新激光技术的提出与应用对超快超强激光技术的发展起到了至关重要的作用。比如, 啁啾脉冲放大(Chirped Pulse Amplification, CPA)技术的提出突破了激光峰值功率提

基金项目: 国家自然科学基金(Nos. 61905257, 61527821, 61521093, U1930115), 上海市自然科学基金(No.20ZR1464500)

第一作者: 王鹏(1990—), 男, 副研究员, 博士, 主要研究方向为四波混频及其应用。Email: wangpeng@zjlab.ac.cn

通讯作者: 刘军(1979—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为超快非线性过程及显微成像。Email: jliu@zjlab.ac.cn

收稿日期: 2022-06-29; 录用日期: 2022-10-09

<http://www.photon.ac.cn>

升近二十年的平台期,极大地促进了超快超强激光技术的发展与应用<sup>[8]</sup>。MOUROU G 教授与他的学生 STRICKLAND D 教授也因为在超快激光放大中提出并应用 CPA 技术而获得了 2018 年的诺贝尔物理学奖。除了激光放大技术,超快超强激光技术还包括高对比度种子激光产生、脉冲展宽、脉冲压缩、激光时域和空域参数测量与优化等多个步骤与内容。在超快超强激光技术的这些研究内容中,各种不同的非线性光学过程发挥着非常重要的作用。比如,在 100 PW 量级的激光放大过程中,由于受限于晶体材料尺寸,目前单级放大只能采用基于 DKDP 非线性晶体的光参量啁啾脉冲放大(Optical Parametric Chirped Pulse Amplification, OPCPA)技术<sup>[9]</sup>。除了 OPCPA 这类二阶非线性光学过程,由于超短的脉冲宽度和超强的激光强度,超快超强激光经过材料的时候很容易出现三阶或更高阶的光学非线性效应。相比于二阶非线性过程,三阶非线性过程有更丰富的非线性光学效应和现象,比如自聚焦、自相位调制、交叉相位调制、三倍频、相干反斯托克斯拉曼散射、四波混频等。因此,研究和应用这些三阶非线性过程将进一步提升超快超强激光自身性能,并拓展其应用范围。

本文总结近年来利用飞秒四波混频,包括交叉偏振波产生(Cross-Polarization Wave, XPW)、自衍射效应(Self-Diffraction, SD)、瞬态光栅效应(Transient Grating, TG)、四波光参量放大(Four-Wave Optical Parametric Amplification, FWOPA)等,来构建新颖同心多色涡旋/径向偏振飞秒超快光源,获得宽带高对比度种子激光,研制脉冲对比度单发测量仪,以及研制脉冲形状宽度单发测量仪。简述了飞秒四波混频过程的相关基础与理论;报告最近在构建新颖同心多色涡旋/径向偏振飞秒激光和时空涡旋飞秒激光特性测量方面取得的一些进展;利用非共线飞秒四波混频来产生高对比度种子激光的进展;在对比度单发测量方面提出的“四阶相关仪”新方法中利用飞秒四波混频过程来获得干净的参考脉冲;介绍了基于 SD 和 TG 效应的自参考光谱干涉方法来实时测量脉冲形状宽度,并研制四类测量仪器;最后进行了总结与展望。

## 1 飞秒四波混频原理及简介

四波混频效应是输入光场中的频率分量  $\omega_1$ 、 $\omega_2$  以及  $\omega_3$  在非线性材料中相互作用,生成新的频率分量  $\omega_4$  的光与物质相互作用过程,常见的四波混频过程包括交叉偏振波产生、自衍射效应、瞬态光栅效应、四波光参量放大等。

相比于二阶非线性过程,四波混频过程有以下优点:1)四波混频使用的非线性材料对材料的对称性没有要求,所有的材料都有三阶非线性系数,使用普通的玻璃片或者宝石片等透明介质就可以作为非线性材料,其价格便宜,易于加工成大尺寸;2)由于非线性材料选择的多样化,入射光的光谱以及偏振适用范围大,基于四波混频过程进行频率变换,可以获得各种频率段的飞秒光,甚至在 EUV 频段都可以发生四波混频过程;3)由于是三阶非线性过程,理论上信号光的脉冲时域对比度与入射光时域对比度的三次方成正比,因而对信号光脉冲对比度的提升能力更强,极高的对比度提升能力促进了其在对比度提升脉冲净化以及对比度表征取样光产生等领域的应用;4)基于三阶非线性过程获得的信号光,其脉冲的时间轮廓被过滤,频谱和频谱相位得到了平滑,这样的信号光在脉冲表征中是优异的参考光。四波混频的优良特性极大促进了其在各个领域的应用。

## 2 新颖光场产生与放大

在超快激光的发展与应用过程中,特别是超快光谱的应用中,为了拓展飞秒激光的波长范围,基于非线性晶体的光参量放大(Optical Parametric Amplification, OPA)得到了迅速的发展。并且,采用非共线光参量放大(Noncollinear Optical Parametric Amplification, NOPA)技术可以拓展相位匹配带宽,从而可以获得周期量级脉宽的飞秒激光脉冲。这些不同波段的飞秒激光脉冲被广泛应用于原子和分子、半导体磁性材料、超导材料、量子结构体系、纳米和表面体系、化学反应、生物大分子等众多体系的超快动力学过程研究<sup>[10-12]</sup>。近年来,随着超快光谱技术应用的深入和新型超快光谱技术的发展,不同于传统的泵浦-探测技术只需要相同光谱的两个飞秒激光脉冲,新技术及应用则需要同时多个不同颜色的飞秒超快激光来进行复杂过程的超快动力学研究,比如一些二维超快光谱探测技术<sup>[13-15]</sup>。而且,一些重要超快过程的实验研究甚至需要同时用到三个不同中心波长且脉宽约 10 fs 的超快激光。如 2010 年,Nature 报道利用 520 nm、620 nm 和 900 nm 三

色约 10 fs 的超快光场直接成功地揭示了视紫质这一眼锥细胞中的重要蛋白质最初光致异构过程的锥形交叉超快动力学。在这些实验装置中,为了获得多个不同波长的飞秒激光,通常采用多个 NOPA 光学系统来获得<sup>[16]</sup>。这样复杂的光路设计不仅使整个系统成本高昂、调节操作复杂,还存在稳定可靠性低、难以精准同步等问题,并且这种设计同时获得的多色飞秒超快光场数量很有限,这些问题限制了这种多色飞秒超快光谱方法的推广应用。

不同于 NOPA,最近基于块状透明材料中的飞秒级联四波混频效应,一套装置就可同时获得了 10 色以上的多色飞秒超快光场,光谱范围主要覆盖可见-近红外波段<sup>[17-24]</sup>。并且,随着飞秒超快激光应用的进一步拓展和深入,一些特殊模场和偏振的光场,比如涡旋光场和矢量偏振光场,在很多应用中也呈现出独特的性能和优势,并且在与物质相互作用时候呈现出独特的新现象,进而也得到越来越多的重视。而最近研究表明基于级联四波混频不仅可以获得多色飞秒超快光场,而且还可以通过精确调控入射激光的时空与偏振特性实现偏振与空间模场的传递,获得涡旋/矢量偏振特性的多色飞秒超快光场<sup>[25, 26]</sup>。

## 2.1 多色飞秒激光产生

2000 年, CRESPO H 等利用来自染料激光器的波长分别为 618 nm 和 561 nm 的激光脉冲作为泵浦光束,在 BK7 玻璃材料中发现了多色飞秒激光产生的新现象<sup>[27]</sup>。此后,基于级联四波混频多色光产生和调控得到了更多的关注和研究<sup>[17-24]</sup>。2008 年, LIU J 等利用钛宝石激光脉冲作为泵浦源,白宝石片作为非线性材料,基于飞秒级联四波混频获得 15 级频率上转换信号光和 2 级频率下转换信号光,总光谱覆盖范围从紫外到红外,超过 1.5 个倍频程的多色光<sup>[17]</sup>。2009 年, LIU J 等利用 1 mm 厚的熔融石英作为非线性材料,通过改变两泵浦光的夹角,实现多色光光谱的调谐<sup>[20]</sup>。为了能获得更短的多色激光脉冲,通过控制两束入射泵浦光的啁啾,可以使两入射的泵浦激光具有相反的啁啾,利用参量过程中的光谱相位的转移特性,可以将入射激光的光谱相位转移到产生的多色飞秒激光脉冲上,从而获得负啁啾或近无啁啾的多色飞秒激光,利用玻璃材料补偿负啁啾就可以获得近傅里叶变换极限的多色激光脉冲<sup>[18]</sup>,实验光路原理如图 1。

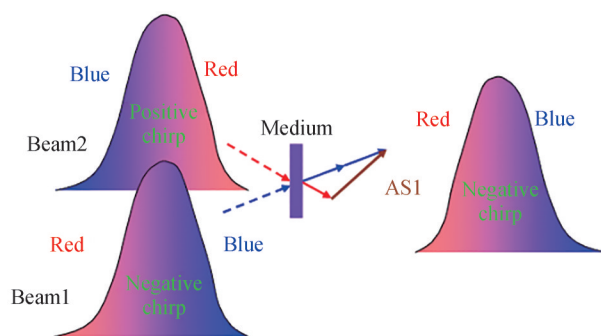


图 1 负啁啾信号光产生的原理<sup>[18]</sup>

Fig. 1 Schematic mechanism of negative CFWM sideband generation<sup>[18]</sup>

不仅可以在一个方向上获得多色飞秒激光,如果入射激光带有啁啾,可以通过控制两入射激光脉冲的延时,选择在两个方向上任意一侧获得多色飞秒激光。并且,在适当的延时情况下,还可以同时在两侧获得多色飞秒激光。不仅可以在一维方向上获得多色飞秒激光,如果透明材料是各向异性材料,实验上还可以获得二维多色飞秒激光<sup>[21]</sup>。并且,二维多色飞秒激光的强度和排列随透明材料在垂直入射激光方向旋转而改变,其原理和结果如图 2。

最初的基于飞秒四波混频的多色飞秒激光产生都是采用空心光纤展宽光来获得。为了简化装置,直接在 25 fs 钛宝石激光器后,利用简单光路就可以获得 8  $\mu$ J 的多色飞秒激光输出<sup>[22]</sup>,如图 3。这一定程度上相当于多个 NOPA 系统,在需要同时用到多个不同波长飞秒激光的超快光谱或显微成像应用中具有显著的优势和潜力。

另外一方面,利用钛宝石飞秒激光及其倍频激光在气体中的飞秒四波混频,已可以产生 DUV 和中红外波段的宽带飞秒激光,从而大大地拓展应用范围<sup>[28]</sup>。

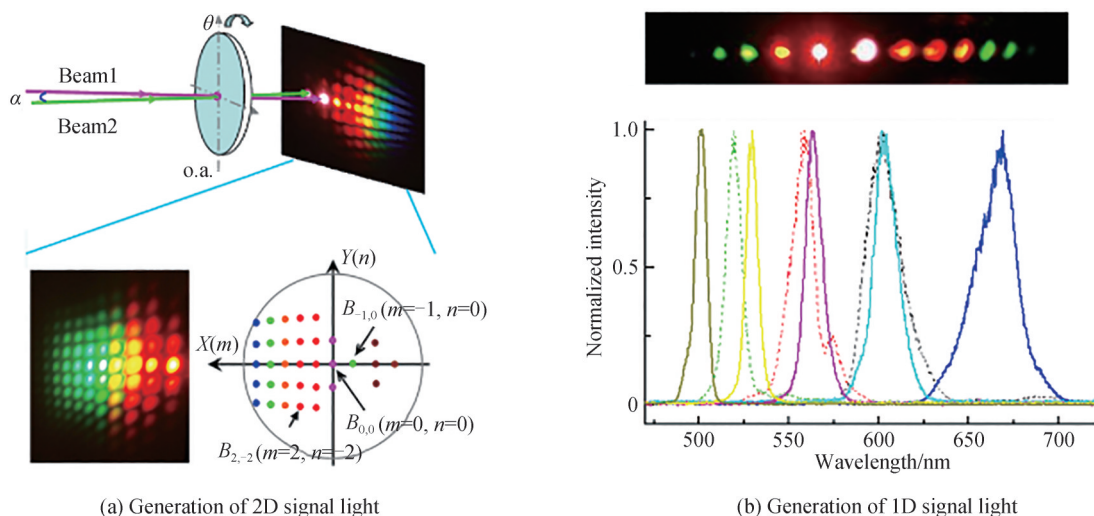


图2 一维与二维多色飞秒激光产生原理及结果<sup>[21]</sup>  
Fig. 2 Generation of 2D and 1D signal light<sup>[21]</sup>

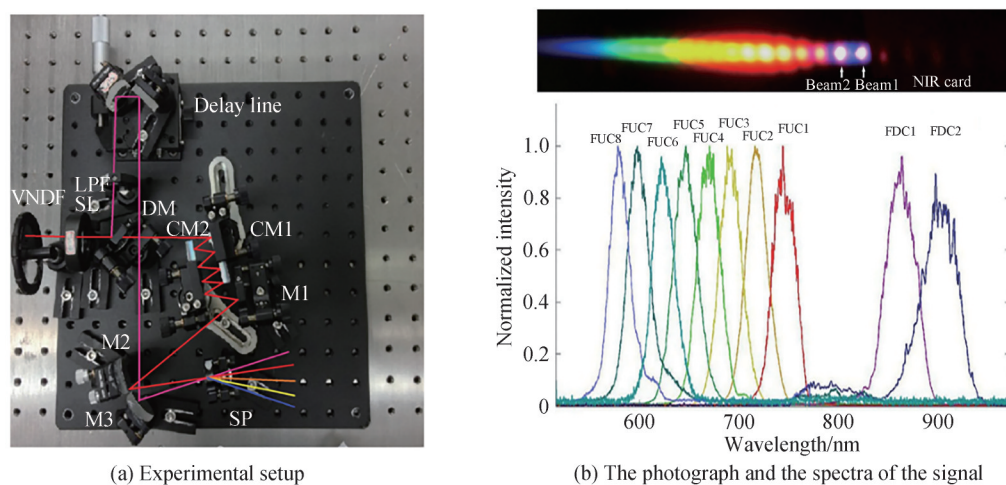


图3 装置及信号光特性<sup>[22]</sup>  
Fig. 3 Experiment setup and signal properties<sup>[22]</sup>

## 2.2 同心多色径向偏振飞秒激光产生

在级联飞秒四波混频的多色飞秒激光产生研究中,由于是三阶非线性过程,可采用任意透明材料来产生,没有晶体切角和相位角的要求。即,飞秒四波混频可以在 $360^\circ$ 的任意方向上发生。基于这一思路,将两入射激光的空间模式与偏振进行调控,让两束激光同心共线地入射到透明材料上,其中一路光束经球面透镜聚焦以汇聚的方式入射到透明材料中,另外一路经球透镜和锥透镜聚焦以发散的方式入射到透明材料中,因而两路光在晶体内交叠,从而产生同心多色径向偏振飞秒激光<sup>[25]</sup>。

实验光路如图4,钛宝石放大器输出的800 nm/30 fs的超快激光脉冲经一片二向色镜(DM1)分为波长大于800 nm和小于800 nm的两束光,再分别经两个中心波长为780 nm和830 nm的液晶聚合物涡旋半波片将高斯光束转换成径向偏振光。然后一束经焦距500 mm的球透镜聚焦,另外一路经焦距200 mm的熔融石英平凸透镜和顶角为 $178^\circ$ 的锥透镜聚焦,两路光经第二个二向色镜(DM2)合束到一块0.5 mm厚的H-ZLAF90玻璃片中。当两束飞秒激光脉冲在玻璃片中时空重合时,基于飞秒级联四波混频过程就产生了同心多色径向偏振飞秒激光。

实验产生的同心多色径向偏振飞秒激光如图4。实验产生了10级频率上转换信号光,其中每一环就是一个级次的飞秒四波混频光束,从里往外级次逐渐增加。经过线偏振检偏器后的多色光如图5(c)~(o),透过检偏器后的多色光分布方向和检偏器方向一致,说明产生的每一级多色信号光都是径向偏振光。这一实验验证了飞秒四

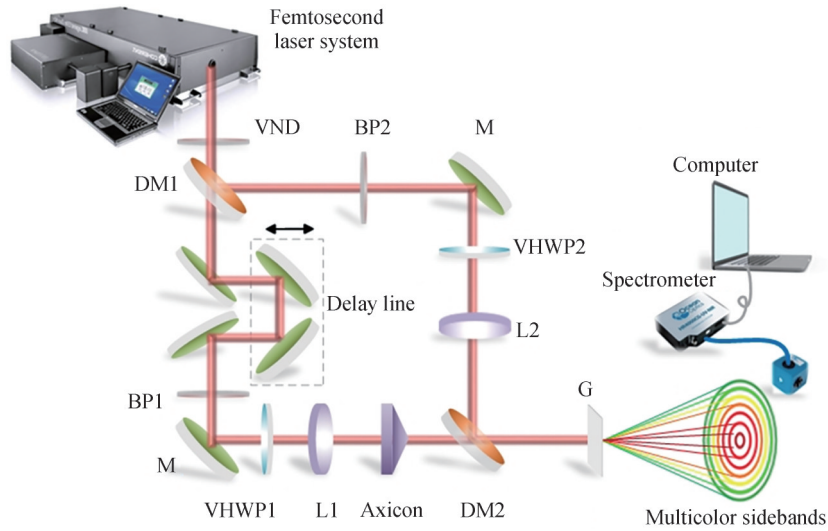


图 4 实验装置示意<sup>[25]</sup>  
Fig. 4 Experiment setup<sup>[25]</sup>

波混频过程中的偏振传递特性,偏振态可以从泵浦光传递到多色信号光。值得注意的是,在三波参量过程中,受限于晶体的相位匹配角,这种 $360^\circ$ 的偏振传递特性是不能实现的。这一实验也表明在飞秒四波混频过程中,通过对两入射激光的偏振进行调控,可以实现对产生的多色信号光偏振态、光谱、时空结构和能量等多个参量进行调控。该方法也可以简便地拓展到其他波段多色共心环状矢量光束的产生,如紫外、中红外甚至远红外等。

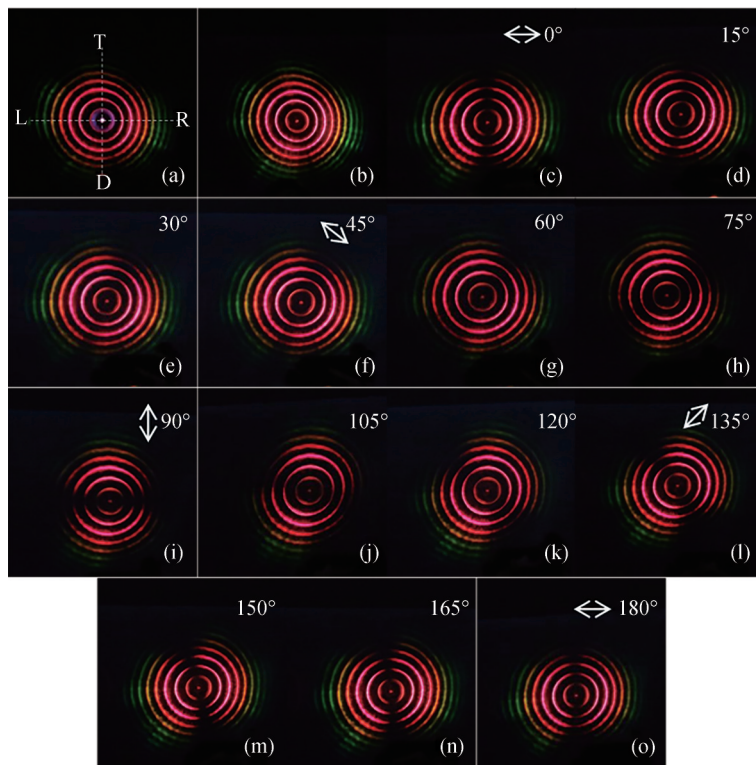


图 5 信号光线偏振检偏器后的光强分布<sup>[25]</sup>  
Fig. 5 The intensity distribution of the signal light after the line polarizer<sup>[25]</sup>

### 2.3 同心多色涡旋飞秒激光产生

飞秒四波混频也是光参量过程,因此参量过程中,光谱相位和空间相位可以传递<sup>[26]</sup>。利用光谱相位的传递特性,LIU J等提出了正负啁啾入射来获得负啁啾多色光,从而避免复杂的啁啾镜来补偿光谱相位。如果对两入射激光的空间参量也引入相位,比如引入涡旋相位,那么出射的多色飞秒激光也会拥有涡旋相位。

基于这一思路,将两入射激光变为涡旋激光,让两束激光同心共线并有一定夹角地入射到透明材料上,可以产生同心多色涡旋飞秒激光。

此处的实验光路与图4类似,不同的地方是,分束后的两束光分别经螺旋相位板调制成涡旋激光。反射光经延迟线后经焦距为250 mm的球透镜(L1)聚焦,另外一路光经焦距为300 mm的球透镜(L2)聚焦,然后经第二个二向色镜(DM2)合束到1 mm厚的YAG薄片里面,其中YAG放在L1的焦点后而在L2的焦点前。当两路光在YAG里面时空重叠时,发生级联四波混频,产生同心多色涡旋飞秒激光。

实验产生的同心多色涡旋飞秒激光如图6,实验获得了9级多色涡旋光。利用一个自制的干涉仪可以分析该多色光的每一级的拓扑荷值,实验结果如图7。该干涉仪使入射光和它的镜像光发生干涉,由上下干涉条纹数量差可以计算出拓扑荷值的大小。通过控制两路泵浦光的轨道角动量可以实现对产生的每一级信号光的轨道角动量的调控。此外,实验也验证了当改变多色光的轨道角动量的时候,同一级次多色光的光谱保持不变。相比于基于级联四波混频产生的一维和二维多色光,这里产生的多色光是同心结构,因此可以实现同时准直和聚焦,并且产生的多焦点在光束传播方向上不同深度,每个焦点可以具有不同的波长和拓扑荷值,这在手性检测、粒子捕获操控等方面具有重要应用前景。这一实验也通过对两入射激光的涡旋和光谱等操控,利用四波混频的相位传递和参量转换特性等,实现了对产生的多色信号光轨道角动量、光谱、时空结构和能量等的多维度同时调控。该方法同样可以方便地拓展到其他波段的同心多色超快激光的产生,如紫外、中红外、远红外等。

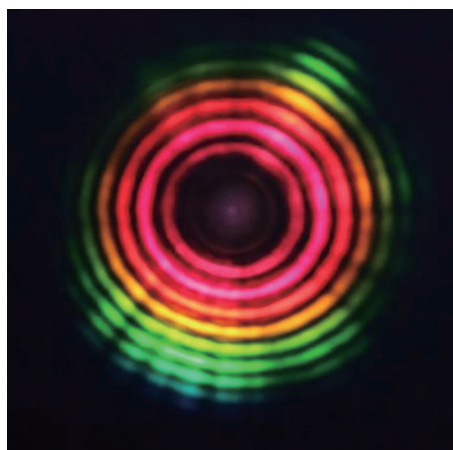


图6 多色同心超快涡旋光束<sup>[26]</sup>  
Fig. 6 Multicolor concentric ultrafast vortex beam<sup>[26]</sup>

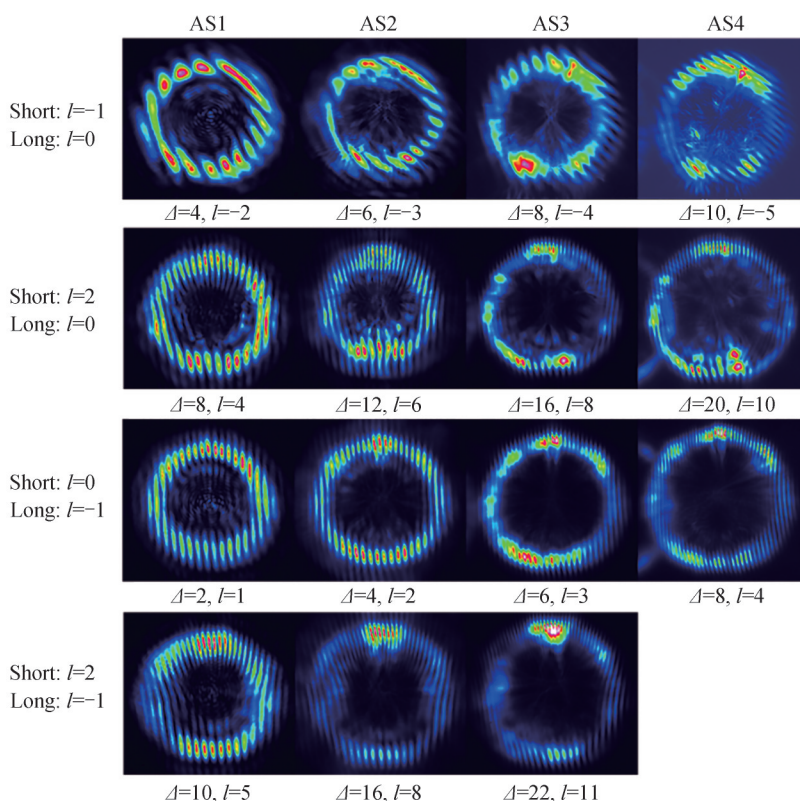


图7 产生的多色信号光的干涉图样<sup>[26]</sup>  
Fig. 7 Interferogram of the generated signal light<sup>[26]</sup>



种子光谱的信号光。如图9(b),当使用全光谱宽度7 nm的中心波长850 nm种子光,可以获得全光谱宽度300 nm的宽光谱信号光。此外,以上四个窄光谱种子光产生宽光谱信号光的夹角都一样,因此有望利用该方法获得光谱可调谐的宽光谱信号光。由窄光谱种子光产生宽光谱信号光的过程,可以利用OPA波矢相互作用来解释。窄光谱的种子光和宽光谱的泵浦光相互作用产生一个光谱更宽的闲频光,然后该闲频光继续和泵浦光相互作用产生光谱更宽的信号光,以上为一个相互作用周期,这样周期不断循环,直至系统达到平衡不再有新频率成分的信号光或者新频率成分的闲频光产生,可以把以上相互作用过程称为“乒乓四波混频”。

实验提供了一种产生宽光谱信号光或者光谱可调信号光的新方法。该方法可以方便地拓展到其他波段,如紫外、中红外、远红外等。此外,该方法也有利于进一步认识OPA过程中波的相互作用过程,指导OPA的应用等。

### 3 高对比度种子激光产生

在超快超强激光的应用中,由于超强激光的聚焦功率密度高达 $10^{21}\sim 10^{24}$  W/cm<sup>2</sup>,而固体材料的损伤阈值通常在 $10^{11}\sim 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>,这就要求激光的对比度高达 $10^{10}\sim 10^{13}$ 以避免前沿预脉冲在主脉冲未到达靶材之前而提前打坏靶材。可以说激光脉冲的时域对比度是除聚焦光强之外最为重要的光学参量,而要获得高对比度超快超强激光的第一步是获得高对比度的种子激光。

在过去的十多年,高对比度种子激光主要通过双CPA系统的中间添加各种非线性光学过程,通过各级非线性过程的时域滤波来提升对比度。本节报告提出的基于非共线飞秒四波混频来获得宽带高对比度种子激光的新方法<sup>[30, 31]</sup>。

#### 3.1 频率简并飞秒四波混频

XPW是频率简并而偏振非简并的飞秒四波混频过程,把信号光分离出来必须使用线性偏振片,但是目前线性偏振片的消光比一般在 $10^4:1$ ,这就限制了对比度提升的能力。

为了克服XPW方法中必须的偏振元件对于对比度提升的限制,可以采用同为频率简并飞秒四波混频的SD方法来提升对比度<sup>[30]</sup>。SD过程中,有两个入射激光脉冲以一定的夹角入射到任意透明材料,在入射激光两侧得到不同级次的自衍射信号光。由于产生的SD信号光与两入射激光脉冲在空间上是分离的,因此SD信号光的对比度提升没有偏振元件消光比的限制。并且,相比于XPW效应只有BaF<sub>2</sub>等极少数材料可用,SD效应可以应用于任意透明材料,光谱适用范围更宽。两入射激光也使得操控参量更多,当然操控参量多也会影响输出激光的稳定性。

实验装置如图10,入射光经过1:1的分束片分为两束,两束入射光分别经过柱透镜聚焦到0.15 mm的玻璃片中,空气中交叉角度1.6°,获得的一级信号光使用小孔滤出并缩束入射到三阶自相关仪进行对比度的表征。

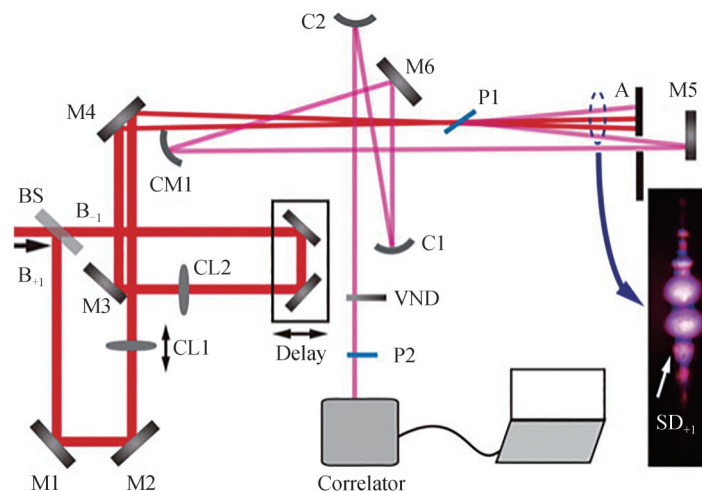


图10 自衍射信号光产生装置<sup>[30]</sup>

Fig. 10 Experimental setup for self-diffraction signal generation<sup>[30]</sup>



当两束SD入射光的强度均为4.9 mJ时,入射光两侧获得的一级信号光强度可以达到780  $\mu$ J和630  $\mu$ J,因而两束入射光到一级信号光的能量装换效率最高达到7.8%。

入射光和信号光的对比度测量比较如图11。待测光的自发辐射衬底相对主脉冲强度约 $10^{-7}$ ,受限于对比度测量装置的测量能力,经过SD过程脉冲净化之后,信号光的自发辐射衬底相对主脉冲强度约 $10^{-12}$ ,其实三阶非线性过程信号光对比度正比于入射光对比度的三次方,真实的信号光对比度应该更好。插图为入射光和信号光在3 ps以内的对比度信息,可以明显发现,对比度提升了至少7个数量级。

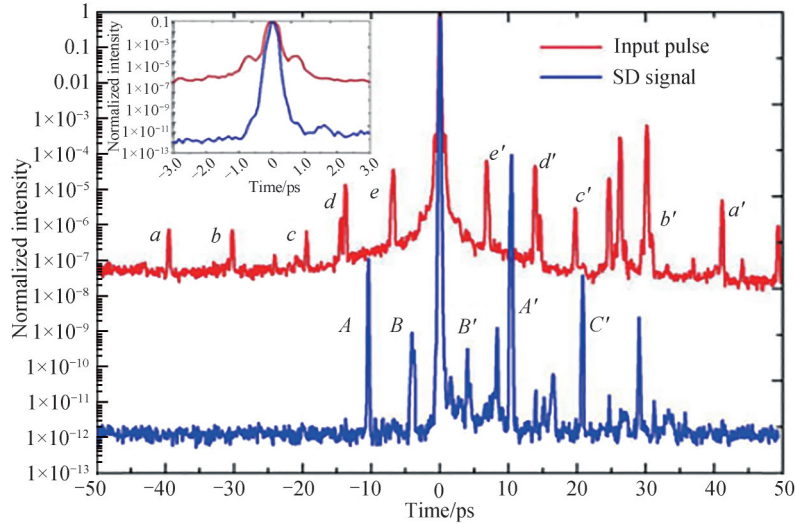


图 11 入射光和信号光的对比度<sup>[30]</sup>

Fig. 11 The temporal contrast of the input pulse and the signal<sup>[30]</sup>

由于自衍射过程两束入射光存在一个交叉角度,获得的信号光会存在角色散,两束入射光中的不同频率成分,在相位匹配的限制下,获得的信号光出射方向不同。实验中采集光斑内不同位置的光谱形状如图12,不同位置的光谱宽度相当,但是中心波长明显偏移了约20 nm,由于角色散特性变化接近于线性分布,因而可以使用常用的棱镜进行色散补偿。

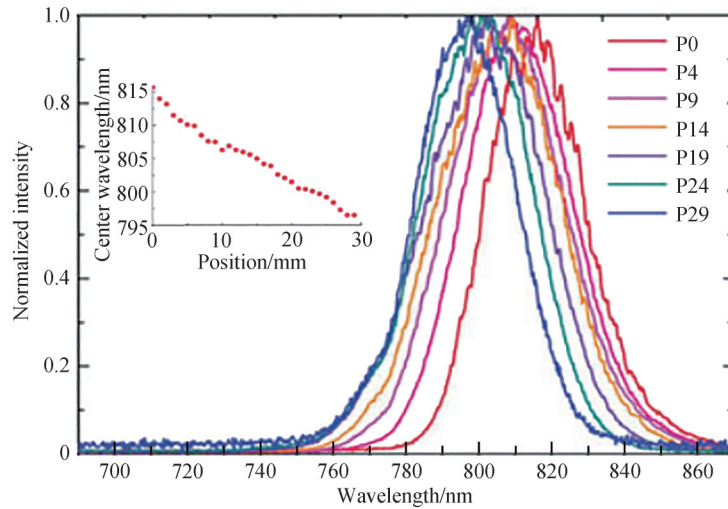
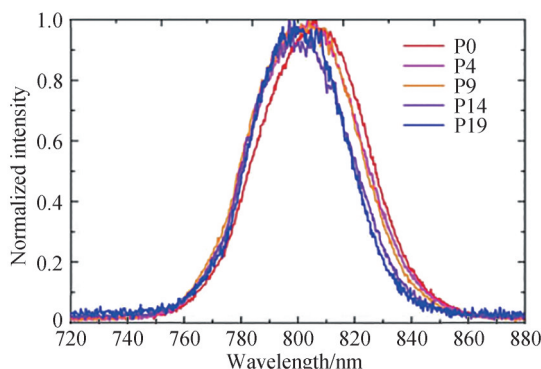


图 12 30个测量点光谱图(插图是不同位置的中心波长变化)<sup>[30]</sup>

Fig. 12 Spectra at 30 different positions(the inset shows the center wavelengths measured at each position)<sup>[30]</sup>

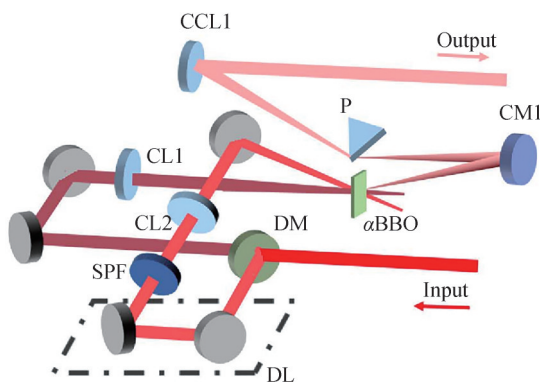
角色散补偿的光路设计中,SD信号光首先经过一个凹面反射镜成像到一个顶角 $60^\circ$ 的棱镜上,调节入射角度以匹配棱镜的角色散特性以及信号光的角色散特性,最终可以消除信号光的角色散。不同空间位置的光谱特性如图13,空间光谱均匀性得到了明显的提升。基于简单的装置,信号光的角色散就可以得到补偿,这将进一步拓展SD信号光的应用。

图 13 角色散补偿之后的自衍射信号光光谱图<sup>[30]</sup>Fig. 13 Spectra of compensated SD signal<sup>[30]</sup>

### 3.2 频率非简并飞秒四波混频

在 10 拍瓦及以下的超强激光中,通常采用基于钛宝石晶体的 CPA 技术来进行放大,其中高对比度种子激光产生的常用方法是基于钛宝石前端的输出激光采用 XPW 和 SD 等频率简并飞秒四波混频来获得。对于数十拍瓦及百拍瓦量级的超强激光,由于受限钛宝石口径,目前技术方案是基于 OPCPA 技术,可供使用的非线性晶体 DKDP 口径可以高达 350 mm,而为了匹配 DKDP 晶体的增益曲线,这时候种子光的中心波长需要在 910 nm,XPW 或者 SD 这种简并四波混频过程不再适用。以往通常基于多级 NOPA 过程进行频率转换和对比度提升<sup>[32, 33]</sup>,但是装置相对复杂,基于一级四波混频过程可以获得高能量高对比度的 910 nm 信号光,为种子光产生提供了新思路<sup>[31]</sup>。

装置的原理如图 14,宽光谱 800 nm 飞秒光在通过一个双透镜后分成两部分用于级联四波混频的两个入射光,为了进一步分离两个输入光束的光谱,实验中使用了截止频率 800 nm 的短通滤波片进一步过滤反射光。两个入射光分别使用焦距为 500 mm 的柱透镜聚焦到  $\alpha$ -BBO 上。产生的一级频率下转换信号光被成像到一枚棱镜上进行角色散补偿,最终由柱面反射镜准直。

图 14 装置简图<sup>[31]</sup>Fig. 14 Schematic of the setup<sup>[31]</sup>

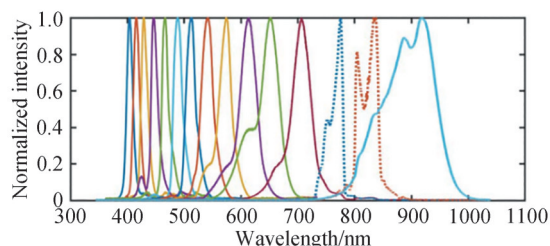
调节入射光的时间和空间重合,可以看到在入射光的两侧产生一系列多色光,如图 15(a),可以观察到多到 18 级的频率上转换信号光。使用光谱仪分析其光谱特性,如图 15(b),整个多色光的光谱范围从 400~1 000 nm,其中一级频率下转换信号光的光谱覆盖 800~1 000 nm。

由于只有一级非线性过程,信号光具有很好的稳定性。半小时以内每间隔 1 min 采集一次光谱,其稳定性如图 16(a),而半小时的能量稳定性是 0.5% RMS,如图 16(b)。此外,增大入射光的能量,信号光的强度还会一直升高,四波混频过程还没有进入饱和区域,说明信号光的输出稳定性还有进一步提升的可能性。

由于级联四波混频的入射光非共线相互作用,获得的信号光会产生一定的角色散,这种角色散可以使用角色散元件进行补偿,通过匹配非共线过程获得的角色散以及棱镜产生的角色散,一级频率下转换信号光的角色散可以得到很好的补偿。补偿前后光斑内不同位置的光谱特性如图 17(a)和(b)。



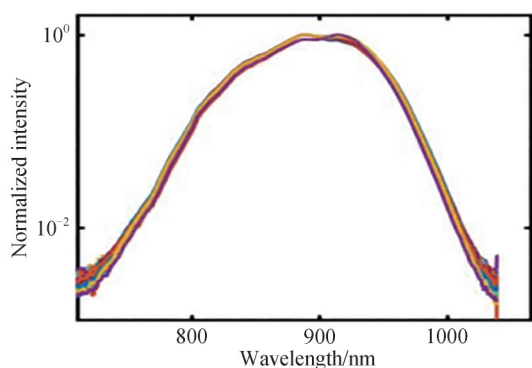
(a) Photograph of the generated CFWM signals



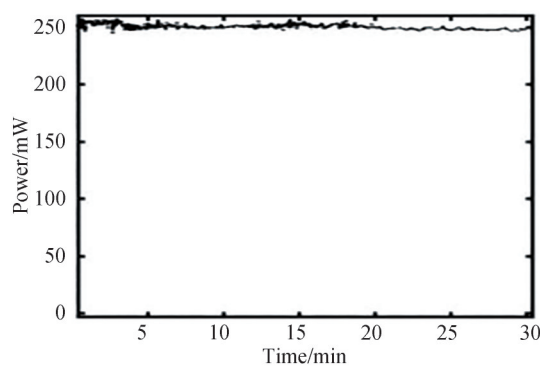
(b) Spectra of the signal and inputs

图 15 多色信号光的产生<sup>[31]</sup>

Fig. 15 The generation of the multicolored sidebands<sup>[31]</sup>



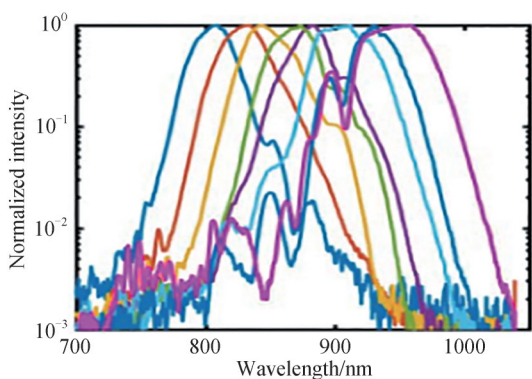
(a) The spectral stability



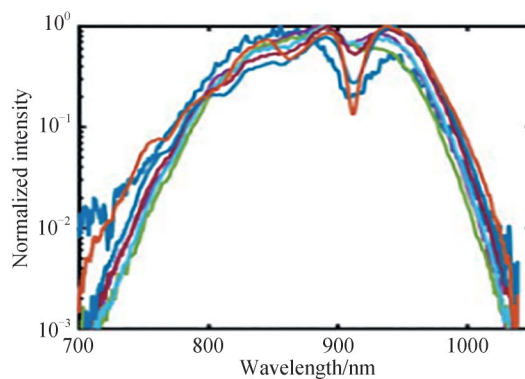
(b) The power stability

图 16 信号光的稳定性<sup>[31]</sup>

Fig. 16 The stability of the signal<sup>[31]</sup>



(a) Spectra before angular compensation

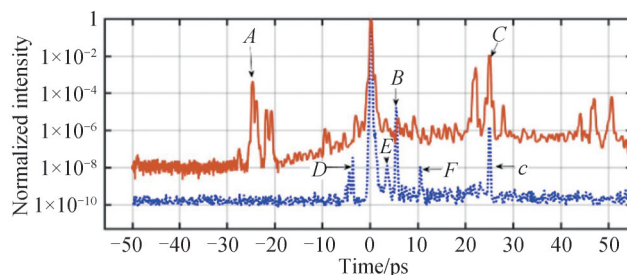


(b) Spectra after angular compensation

图 17 信号光的角色散补偿<sup>[31]</sup>

Fig. 17 The angular compensation of the signal<sup>[31]</sup>

一级频率下转换信号光是基于三阶非线性过程获得,和自衍射过程类似,其对比度应该同样得到净化和提升,但是 910 nm 的激光脉冲的对比度测量没有合适的商用测量装置。基于另一套钛宝石放大器输出光,获得中心波长 830 nm 的一级频率上转换信号光,以匹配商用三阶自相关的适用光谱范围,入射光的对比度和信号光的对比度测量如图 18。基于级联四波混频过程,信号光的对比度应该是入射光的对比度的三次方,脉冲前后沿的 A 和 C 都符合这种特性规律。图中 B 是由于  $\alpha$ -BBO 晶体的前后表面反射引入, D、E、F 都是装置自身引入的小脉冲。

图 18 入射光(实线)和信号光(虚线)的对比度曲线<sup>[31]</sup>Fig. 18 The temporal contrast curves of the input pulse (solid line) and signal (dashed line)<sup>[31]</sup>

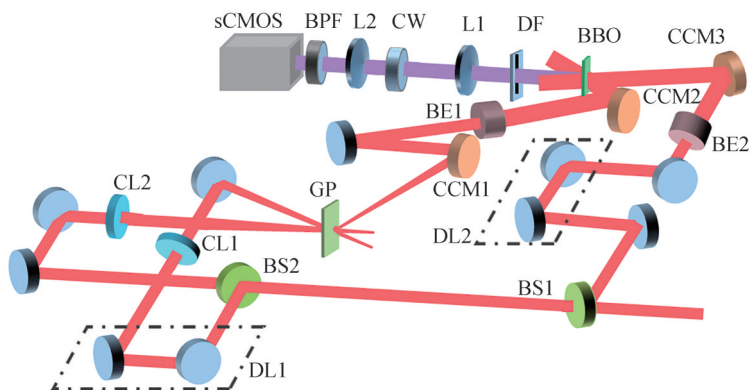
## 4 对比度单发测量技术

超快超强激光,特别是PW激光通常运行在低重频甚至单发情况,这给激光时域特性参量的测量提出了新的需求。因为低重频或单发运行,不能进行传统扫描式测量,这就需要发展单发测量技术。1993年,三阶自相关仪被用于对比度单发测量,测量动态范围约 $10^6$ <sup>[34]</sup>。2021年,通过使用光纤阵列结合光电倍增管作为探测装置,测量的动态范围甚至高达 $10^{13}$ <sup>[35]</sup>。在三阶自相关仪中,取样光是基于倍频过程获得,因而在互相关和频过程存在群速度失配影响时间分辨率。此外,倍频过程的脉冲净化能力有限,测量的保真性受限制。另一种对比度单发测量方法是基于自参考光谱干涉(Self-Reference Spectral Interferometry, SRSI)的方法,取样光是基于XPW过程获得,时间分辨率可以达到20 fs,但是测量动态范围和时间窗口分别被限制在 $10^8$ 和20 ps<sup>[36]</sup>。

### 4.1 四阶相关仪

2019年本课题组研发了用于对比度单发测量的四阶自相关仪,以期望解决对比度单发测量时间分辨率以及保真性的问题<sup>[37, 38]</sup>。四阶自相关的取样光是利用简并四波混频过程获得,理论上基于三阶非线性过程获得的信号光的对比度是其入射光对比度的三次方,更高对比度的取样光极大减弱了取样光后沿小脉冲对测量结果的影响,保证了测量的保真性;其次,待测光和取样光的中心波长差别很小,群速度失配的影响有限,因而测量的时间分辨率有巨大提升潜力。

设计搭建的对比度单发测量四阶互相关仪主要包括三个部分:取样光产生、互相关过程、信号光采集以及处理过程,实验装置如图19。入射光由一个反射/透射(R:T)比率为30:70的分束片分为两束。透射光被用于基于自衍射过程获得高能量高对比度取样光,而反射光束被用作待测光。透射光进一步分为两束并被两个柱透镜聚焦在楔形玻璃薄片上。当两个人射光时间空间重合之后,就会基于自衍射过程获得一系列信号光。用小孔选取能量最高的一级自衍射信号光并使用柱面反射镜准直用于取样光。高能量的取样光和待测光都是用两个扩束器扩束,然后被两个200 mm焦距的柱面反射镜聚焦到一个宽度21 mm楔形非线性BBO晶体。两束光在空气中以约 $63^\circ$ 的交叉角相交,并基于互相关和频获得信号光。最后,信号光被成像到16位sCMOS相机进行强度分析。为了便于分析信号光强度,可以使用一个条形密度衰减片对主脉冲信号

图 19 实验装置<sup>[38]</sup>Fig. 19 The experimental setup<sup>[38]</sup>

光强度进行衰减,同时使用了一个镀膜的楔形板在原始相关信号下面引入了一个衰减的参考复制信号。此外,在sCMOS相机前安装了中心波长400 nm的带通滤波片,以避免来自环境的噪音。

首先利用飞秒钛宝石放大器测试装置。入射光的能量约8 mJ,光斑直径为10 mm。最终基于自衍射过程获得的自衍射信号光能量约150  $\mu$ J。调节待测光和取样光的交叉角度以及时间空间重合,就可以观察到蓝色信号光产生,他们被成像到sCMOS上,如图20所示,上方强度大的是原始的自相关信号,其中主脉冲已经被一个条形的衰减片所衰减。下方没有饱和度的较弱信号光是由镀膜的楔板的前后反射引入的衰减的复制信号光,它可以用来获得上方信号光中依然使相机过曝的前后沿小脉冲的强度。sCMOS相机检测到的信号光在垂直和水平方向上分别覆盖了约 $20 \times 1770$ 像素区域,基于互相关时间空间转换原理,其时间窗口信息被编码到空间水平方向上。时间窗口的计算式为 $t=2 \times l \times p \times \sin\theta/c$ ,其中 $l$ 是sCMOS传感器的像素大小, $p$ 是相对于主脉冲中心的像素数, $\theta$ 是采样光与自相关信号在空气中的交叉角, $c$ 是空气中的光速,1770个像素点大约对应时间窗口为65 ps。将沿垂直方向的20个像素的强度相加,并减去sCMOS的背景噪声,就可以得到沿水平方向的强度曲线。原始信号光中依然过曝的信号光其强度可以通过楔形板引入的参考光进行恢复,最终结合衰减片的衰减系数就可以恢复出BBO晶体处的信号光强度分布,表征着对比度信息。

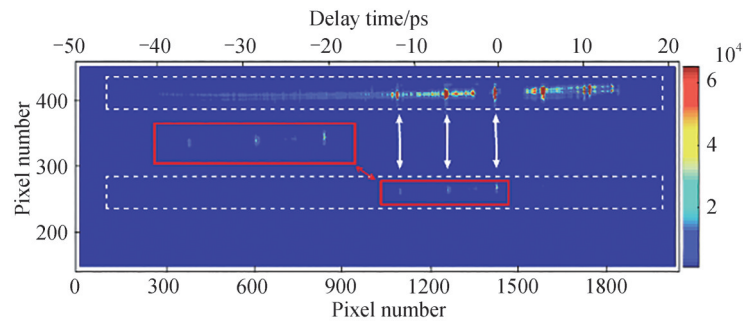


图20 sCMOS相机上的信号光分布<sup>[38]</sup>

Fig. 20 The signal on the sCMOS<sup>[38]</sup>

实验测量表征了两发激光脉冲不同时间窗口的对比度信息并进行了拼接,同时还使用三阶自相关仪进行了测量以对比测量结果,如图21。待测光后沿有个很强的小脉冲A,这样的小脉冲会在三阶自相关信号光前沿引入一个伪脉冲,但是基于四阶自相关,由于取样光的对比度更高,后沿小脉冲对测量保真性的影响就极大减弱。

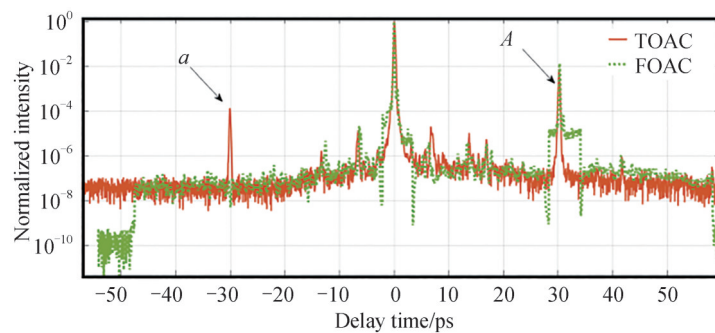
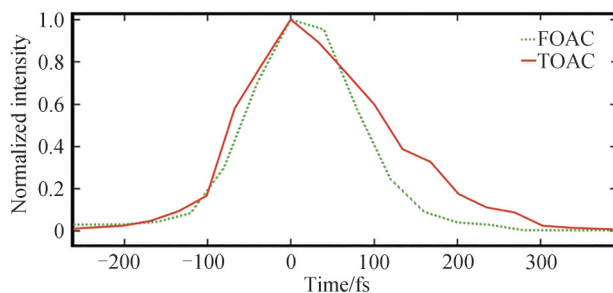
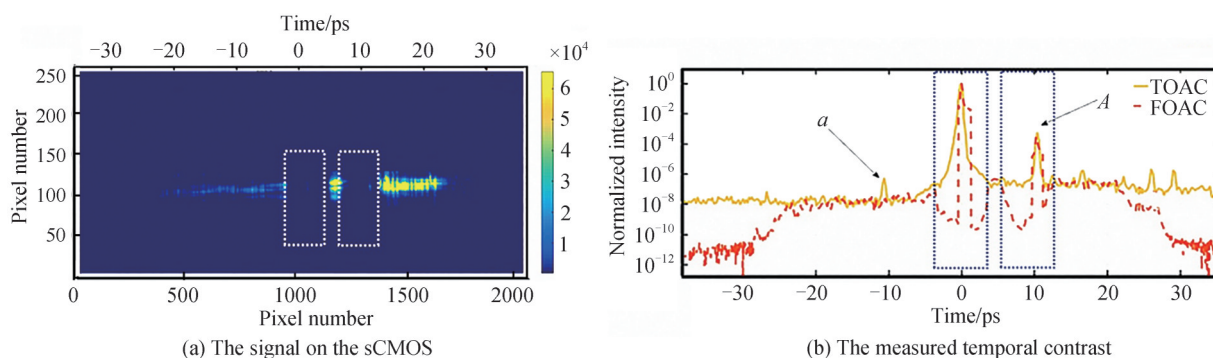


图21 测量的对比度结果<sup>[38]</sup>

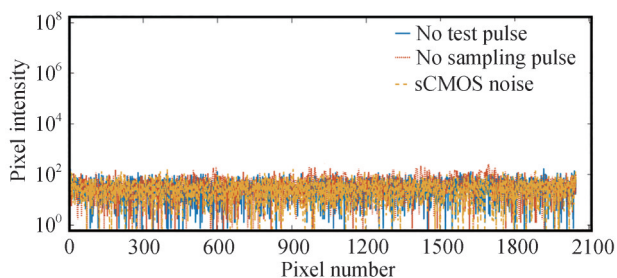
Fig. 21 The measured temporal contrast<sup>[38]</sup>

时间分辨率是对比度测量装置的另一个重要参数,通过和三阶自相关的测量结果进行对比,四阶自相关装置对比度接近160 fs,如图22。

为进一步验证装置的测量能力,利用另一套钛宝石放大器以提高入射光的能量。当入射光的能量高达20 mJ,待测光和取样光的能量分别为4 mJ和450  $\mu$ J,和数据采集装置的本底噪声相比,装置的测量动态范围可以到接近 $10^{11}$ ,测量结果如图23。同样地,测量结果也和三阶自相关装置测量结果匹配。图中小脉冲A是利用一个1 mm玻璃片前后表面反射引入的小脉冲,以验证测量的准确性以及测量的保真性。

图 22 线性坐标轴 TOAC 和 FOAC 测量对比度曲线<sup>[38]</sup>Fig. 22 Correlation traces by the TOAC and FOAC with a linear plot of intensity<sup>[38]</sup>图 23 20mJ 激光脉冲对比度测量结果<sup>[38]</sup>Fig. 23 The temporal contrast of the 20 mJ laser pulse<sup>[38]</sup>

杂散噪声影响着测量的动态范围,需要尽量减弱杂散噪声强度。在实验中,一方面,由于 SHG 对相位匹配条件敏感,可以设计 BBO 切角让待测光和取样光相对于 BBO 的光轴的角度大角度偏离相位匹配角,另一方面,要保证 BBO 晶体的清洁度,不要有损伤或者灰尘。分别遮挡待测光和取样光,采集杂散噪声并和相机杂散噪声对比,如图 24 所示,杂散噪声和相机的本底噪声强度相当。

图 24 sCMOS 的本底噪声以及 SHG 信号光的杂散噪声<sup>[38]</sup>Fig. 24 The detector noise from the sCMOS and scattering noise from the SHG signals<sup>[38]</sup>

最后,从拍瓦系统中分出一部分高对比度飞秒光,进一步验证装置的测量能力,分出的待测光的能量约 10 mJ,四阶自相关测量结果以及三阶自相关测量结果如图 25。在 -40 ps 左右,待测光的对比度约为  $2 \times 10^{10}$ ,这也进一步验证了测量装置高动态范围的测量能力。

取样光的获取对于四阶自相关至关重要,基于自衍射虽然可以获得满足要求的取样光,但是自衍射过程需要两束入射光的时间空间重合,装置调节相对复杂,自衍射过程的效率相对较低。为了进一步优化四阶自相关装置并提升测量的动态范围,设计了基于 XPW 过程获得取样光的四阶自相关装置<sup>[37]</sup>。

装置的原理设计如图 26,入射光首先被分为两束,其中反射光作为待测光,透射光经过线性偏振片并柱透镜一维线聚焦,焦点附近放置了两个氟化钡晶体,基于 XPW 过程获得高能量取样光,从氟化钡晶体出射光经过准直,并使用另一个线性偏振片滤出取样光。取样光进一步经过啁啾镜色散补偿压缩脉宽并最终和待测光大角度交叉于 BBO 晶体中。获得的互相关信号光使用两个柱透镜成像到 sCMOS 相机上,水平方向

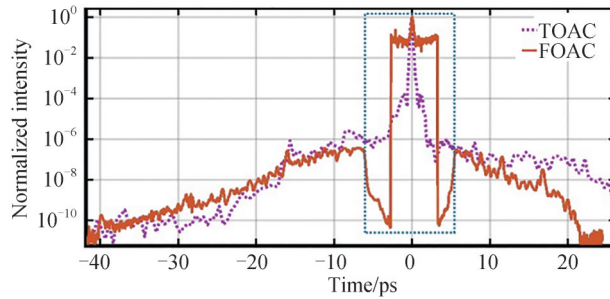


图 25 对比度测量结果<sup>[38]</sup>

Fig. 25 The temporal contrast measurement results<sup>[38]</sup>

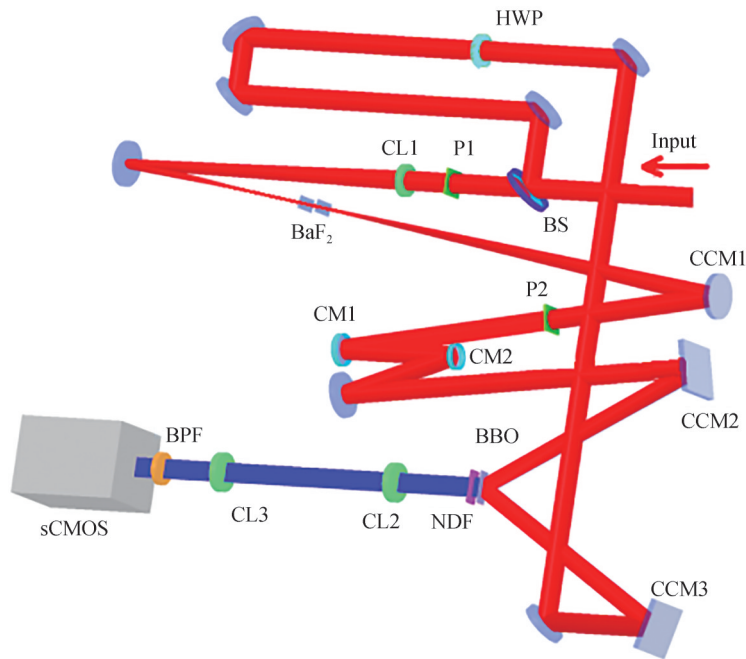


图 26 装置原理<sup>[37]</sup>

Fig. 26 The setup of the device<sup>[37]</sup>

1:1 成像, 竖直方向聚焦, 使得互相关信号光在水平方向占用的像素行数尽量少。主脉冲同样使用了条形衰减片进行强度衰减, 并使用 400 nm 带通滤波片去除环境噪声。

首先实验研究了取样光的特性。当整个装置入射光的能量为 6 mJ 时, XPW 过程入射光能量为 4 mJ, 而取样光的单脉冲能量为 400  $\mu$ J, 虽然转换效率只有 10%, 但是由于入射光是一维线聚焦, 取样光的能量足够高, 这样的高能量取样光有益于装置测量动态范围的提升。使用光谱仪测量取样光的光谱, 光谱范围覆盖 673 nm 到 900 nm, 中心波长不变; 经过啁啾镜色散补偿之后, 脉冲宽度使用二阶自相关仪测量为 27.2 fs。此外, 取样光一维线聚焦之后, 空间强度分布均匀, 由于单发测量是依靠大角度交叉待测光和取样光以分波前的方式实现, 光强分布的均匀性保证了测量的准确性。

调节待测光和取样光的交叉角度以及时间空间重合, 可以在他们中间看到蓝色的互相关信号光产生, 信号光经过衰减并成像到 sCMOS 相机上, 如图 27(a), 信号光在竖直方向上只占用了约 10 行像素点, 水平方向占用约 800 个像素点。竖直方向像素强度求和, 信号光在水平方向的强度分布如图 27(b)。

由于实验使用的 BBO 厚度相对较厚, 出射互相关信号光在水平方向发散, 影响了信号光成像到 sCMOS 相机过程的空间分辨率, 尽管待测光脉冲宽度只有 25 fs, 但是互相关信号光占据的像素点约 25 个像素点, 对应时间宽度约 920 fs。水平方向每 25 个像素点求和, 像素点在水平方向的强度分布来表征待测光的时间域对比度, 虽然测量的时间分辨率退化, 但是测量的动态范围得到提升。恢复出的对比度信息如图 28(a), 分别在取样光和待测光中插入一个厚度为 0.5 mm 的玻璃片, 这样就会在脉冲前沿或者脉冲脉冲后沿 5 ps 处引

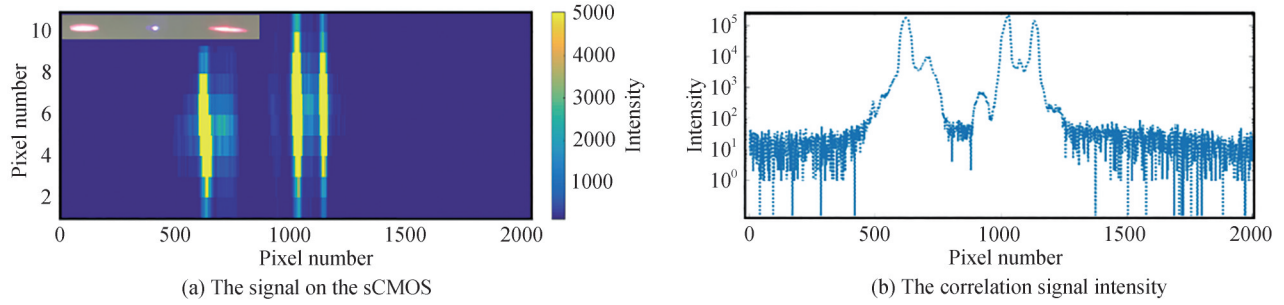


图 27 sCMOS 相机上的互相关信号光的强度分布<sup>[37]</sup>  
Fig. 27 The correlation signal on the sCMOS<sup>[37]</sup>

入相对强度约  $10^{-3}$  的脉冲(如图(a)中  $a$  和  $A$ ),验证了装置的测量准确性。由于使用的 BBO 晶体口径小,限制了测量时间窗口,但测量窗口以外的相机自身噪声相对主脉冲的强度约  $6 \times 10^{-12}$ ,表征着高动态范围测量能力。实验中同时测量了互相关信号光的能量约  $10 \mu\text{J}$ ,对应着光子数约  $2 \times 10^{13}$ ,而相机噪声对应的光子数约为 64,这样估测出的测量动态范围约  $3.2 \times 10^{-12}$ ,和互相关测量结果相符合,进一步验证高动态范围测量能力。此外,分别遮挡待测光和取样光,杂散噪声的强度也和相机噪声强度相当,如图 28(b)。

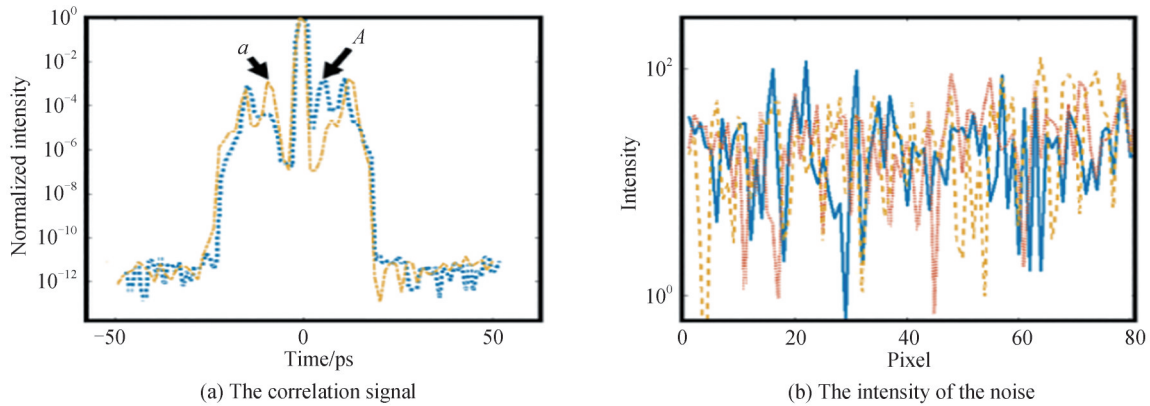


图 28 测量的对比度信息以及噪声强度<sup>[37]</sup>  
Fig. 28 The measured temporal contrast and the intensity of the noise<sup>[37]</sup>

#### 4.2 基于对比度降低的 SRSI-ETE 对比度单发测量

SRSI-ETE 技术用于对比度单发测量具有极高的测量时间分辨率,但是其测量动态范围有限只达到了  $10^8$ 。为了进一步提高测量的动态范围,首先通过脉冲啁啾、反饱和吸收、光克尔透镜效应等过程定量降低待测脉冲的对比度,然后再对降低了对比度的激光脉冲进行测量,并最终结合对比度降低量及测量值重建出入射激光脉冲的对比度信息<sup>[39]</sup>,其基本原理如图 29。

直接调节待测光的脉冲宽度,比如经过一定厚度的玻璃材料或者调节压缩光栅,这样主脉冲以及一些前后沿小脉冲的强度会相应降低,但是 ASE 的强度基本维持不变,这就相当于入射光的对比度得到了降低。实验中入射光的脉冲宽度分别为 240 fs、670 fs、1 476 fs,他们的对比度信息通过三阶自相关仪测量,测量结果如图 30,图中  $a$  处的相对强度分别为  $9.7 \times 10^{-8}$ 、 $2.7 \times 10^{-7}$ 、 $5.9 \times 10^{-7}$ ,强度比值为 1:2.78:6.08,这和脉冲展宽的比率是相匹配的。

除了测试脉冲展宽这种对比度降低方法外,还研究了基于反饱和和吸收以及光克尔透镜效应的对比度降低方法,其基本装置原理如图 31。入射的待测光经过分束片分成两束,反射光经过自衍射这一三阶非线性过程,产生测量所需的自衍射信号作为参考光;透射光首先透过一块透明平片,引入定标小脉冲,然后再经过对比度降低模块降低对比度;以此对比度降低了的待测光作为新的待测光与参考光利用 SRSI-ETE 方法在光栅光谱仪中进行光谱干涉,获得三维光谱数据;对此数据进行二维傅里叶变换,并提取交流项一行求平方值,获得对比度降低了的脉冲的对比度信息;结合定标小脉冲与主脉冲之间的关系变化,即对比度降低量,即可重建出入射激光脉冲的对比度信息。



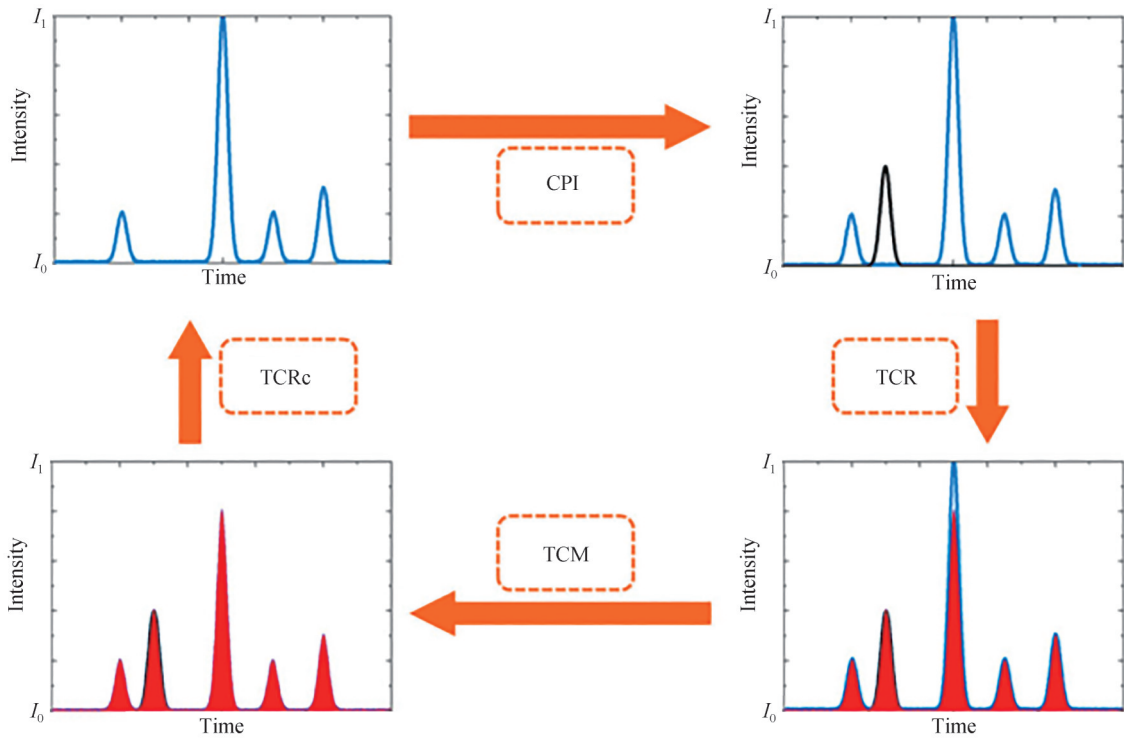


图 29 高动态范围对比度测量原理<sup>[39]</sup>

Fig. 29 Principle of high dynamic temporal contrast characterization<sup>[39]</sup>

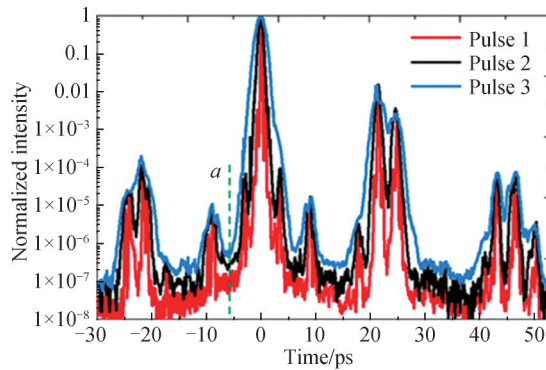
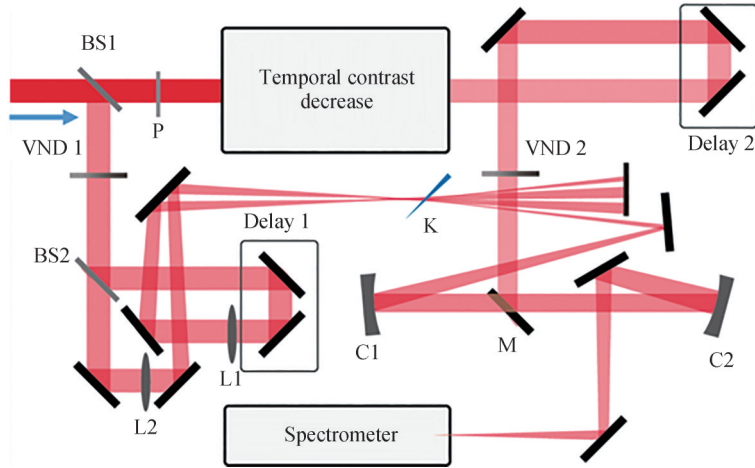
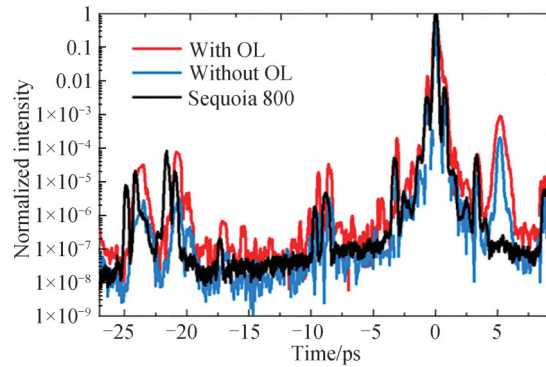
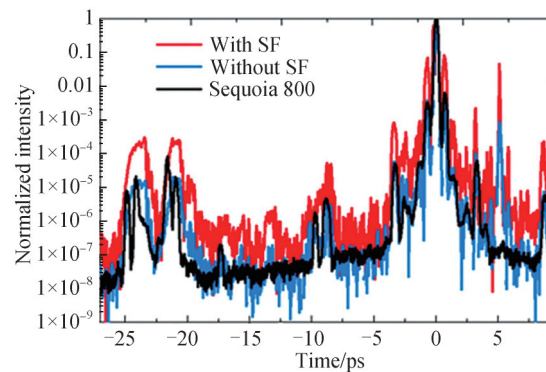


图 30 不同脉宽的待测光对比度曲线<sup>[39]</sup>

Fig. 30 The temporal contrast curves of all three pulses at three different pulse widths<sup>[39]</sup>

反饱和吸收体具有强光透射率低但是弱光基本无衰减的光学特性,恰好符合对比度降低的要求,通过反饱和吸收体之后,脉冲前后沿小脉冲以及 ASE 强度不变,但是主脉冲强度得到衰减。实验中,当入射光的强度增大到  $19 \text{ GW/cm}^2$  时,反饱和吸收体的透射率变为  $17\%$ ,这相当于主脉冲的强度衰减到约  $1/5$ 。经过反饱和吸收体前后的激光脉冲其对比度如图 32,可见经过反饱和吸收体之后激光脉冲的对比度降低到约  $1/5$ ,验证了这种对比度降低技术的有效性。

光克尔效应也是一种三阶非线性过程,如果入射光光斑是高斯模式,就会产生克尔透镜的效果。克尔效应和入射光的强度相关,脉冲前后沿小脉冲以及 ASE 强度弱,基本不产生克尔透镜的聚焦效果,但是主脉冲的强度大,经过克尔透镜的聚焦效果,主脉冲相对前后沿小脉冲以及 ASE 的传播方向发生了偏移,使用小孔遮挡住偏移的主脉冲,滤出原来的前后沿小脉冲以及 ASE 部分,相当于对比度进行了降低。实验中  $3.8 \text{ mJ}$  飞秒光聚焦入射到  $1 \text{ mm}$  厚度的熔融石英玻璃片中,选取光斑的边缘弱光部分作为待测光,经过光克尔介质前后脉冲比度信息测量结果如图 33,待测光的对比度降低到约  $1/17$ ,这样使用一级克尔透镜效应,RSI-ETE 技术的测量动态范围就提升到  $10^9$ 。

图 31 SRSI-ETE 装置原理<sup>[39]</sup>Fig. 31 Schematic of SRSI-ETE device<sup>[39]</sup>图 32 有无反饱和和吸收体对比度测量结果对比<sup>[39]</sup>Fig. 32 Temporal contrast of the laser pulse with and without anti-saturated absorption effect<sup>[39]</sup>图 33 有无光克尔效应对比度测量结果<sup>[39]</sup>Fig. 33 Temporal contrast curves of the input pulse with and without optical Kerr effect<sup>[39]</sup>

目前,在验证实验中只把对比度降低约一个数量级,但是通过级联多种对比度降低技术,待测光对比度有望降低多个数量级,进一步突破测量仪器测量动态范围的限制。

## 5 脉冲形状宽度单发测量技术

超快超强激光脉冲被广泛应用于物理、材料科学、化学、生物和生物工程等领域的研究,例如激光等离子体物理,化学中的超快反应动力学,生物大分子、固态和双光子激光显微镜<sup>[40-42]</sup>都需要飞秒脉冲作为激光激发源。准确地描述激光脉冲的脉冲宽度或完整的时间分布在上述领域的应用中至关重要,因为它不仅指

示脉冲的时间宽度,还指示脉冲的峰值功率。

SRSI作为光谱干涉测量(Spectral Interferometry, SI)技术的扩展<sup>[43]</sup>,是一种解析、灵敏、准确和快速的技术,相比于频率分辨光学选通法<sup>[44]</sup>(Frequency-resolved Optical Gating, FROG)和用于直接电场重建的光谱相位干涉法<sup>[45]</sup>(Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction, SPIDER),其光路和重建算法大大简化。

将未知脉冲与已知光谱和相位的参考脉冲以时间间隔 $\tau$ 先后输入到光谱仪中。光谱仪获得的光谱干涉图为 $S_{SI}(\omega) = S_r(\omega) + S_u(\omega) + 2\sqrt{S_r(\omega)}\sqrt{S_u(\omega)}\cos[\varphi_u(\omega) - \varphi_r(\omega) + (\omega)\tau]$ ,其中 $S_r(\omega)$ 和 $S_u(\omega)$ 分别为参考脉冲和未知脉冲的光谱, $\varphi_r(\omega)$ 和 $\varphi_u(\omega)$ 为参考脉冲和未知脉冲的光谱相位。因此,在光谱干涉图的干涉条纹中包含参考脉冲与未知脉冲的相位信息。利用傅里叶变换光谱干涉法(FTSI)可以从光谱干涉图中提取未知脉冲的光谱相位。

假设 $E_r(\omega)$ 和 $E_u(\omega)$ 分别为参考脉冲和未知脉冲关于角频率 $\omega$ 的复光谱振幅,光谱仪采集的干涉图可以表示为

$$D(\omega, \tau) = |E_r(\omega) + E_u(\omega)e^{i\omega\tau}|^2 = |E_r(\omega)|^2 + |E_u(\omega)|^2 + E_r^*(\omega)E_u(\omega) + c.c. = S_0(\omega) + f(\omega)e^{i\omega\tau} + c.c. \quad (1)$$

式中, $S_0(\omega)$ 为参考脉冲和未知脉冲的光谱强度之和, $f(\omega)$ 为两者的干涉项。如图34,可以通过基于傅里叶变换和解析的过程从中提取未知脉冲的光谱和光谱相位。

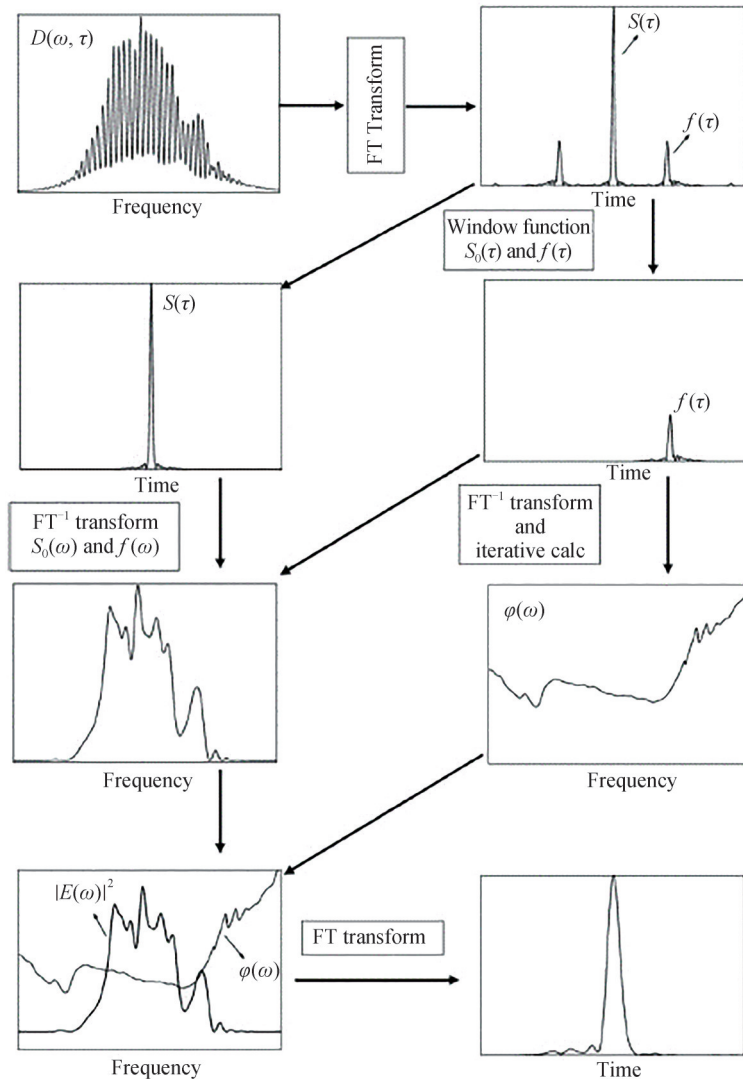


图34 傅里叶变换光谱干涉法<sup>[46]</sup>  
Fig. 34 Fourier transform spectral interferometry procedure<sup>[46]</sup>

1)将干涉信号 $D(\omega, \tau)$ 从频域傅里叶变换至时域,得到 $S(\tau)$ 和 $f(\tau)$ 的时域信号。

2)选取合适的窗函数,例如超高斯窗,从步骤1中获得的时间信号中分离 $S(\tau)$ 和 $f(\tau)$ 。窗函数的宽度应为 $S(\tau)$ 与 $f(\tau)$ 间隔的一半或参考脉冲与未知脉冲延迟时间的一半。

3)逆傅里叶变换步骤2中获得的 $S(\tau)$ 和 $f(\tau)$ ,获得频域中的 $S_0(\omega)$ 和 $f(\omega)$ 信号。

4)利用步骤3中获得 $S_0(\omega)$ 和 $f(\omega)$ ,通过表达式(2)和(3)解析地计算未知脉冲和参考脉冲的频谱幅度:

$$|E_u(\omega)| = \frac{1}{2} \left( \sqrt{S_0(\omega) + 2|f(\omega)|} \right) - \sqrt{S_0(\omega) - 2|f(\omega)|} \quad (2)$$

$$|E_r(\omega)| = \frac{1}{2} \left( \sqrt{S_0(\omega) + 2|f(\omega)|} \right) + \sqrt{S_0(\omega) - 2|f(\omega)|} \quad (3)$$

5)通过 $\arg[f(\omega)]$ 计算相位,则待测脉冲的初始频谱相位可以由公式(4)得到

$$\phi_u(\omega) = \phi_r(\omega) + \arg[f(\omega)] \quad (4)$$

式中, $\phi_u(\omega)$ 和 $\phi_r(\omega)$ 分别为待测脉冲和参考脉冲的光谱相位。

6)将步骤4)中获得的待测脉冲频谱幅度与步骤5)中获得的光谱相位相结合进行傅里叶变换,可得到待测脉冲的时间分布。

SRSI是在SI的基础上发展而来的。由于在超短脉冲领域,难以找到合适的已知光谱和相位的参考脉冲,因此SRSI与SI的主要区别在于SRSI中的参考脉冲是由入射脉冲通过频率恒定的四波混频过程产生的。通过频率守恒的非线性光学过程,由输入的未知脉冲自身的一部分产生参考脉冲,将自产生的参考脉冲与输入的未知脉冲以时间延迟 $\tau$ 分离,并共线输入到光谱仪中,产生光谱干涉。最初,SRSI是从利用XPW过程改善超强飞秒激光的时间对比度的研究发展而来的<sup>[47-49]</sup>。由于XPW过程的时间滤波效应,产生的XPW脉冲具有比入射脉冲更宽和更平滑的频谱以及更平滑和更平坦的频谱相位<sup>[50]</sup>。如果输入的未知脉冲的脉宽小于其傅里叶变换受限脉冲脉宽的两倍<sup>[51]</sup>,基于时间滤波效应,所生成的参考脉冲的频谱相位在整个频谱范围内几乎是平坦的。利用经典FTSI算法即可从频谱干涉中重建未知脉冲的频谱幅度和相位。

然而,由于频谱幅度以及相位的恢复需要假定产生的XPW波的频谱相位是绝对平坦的或等于零而且XPW信号光的光谱也要宽于待测光光谱,SRSI方法通常要求待测光的啁啾值很小。如果入射脉冲的啁啾使脉冲的持续时间比其傅里叶变换受限脉冲的两倍还宽,则所生成的参考脉冲的频谱带宽比入射脉冲的频谱带宽窄<sup>[52]</sup>。此外,尽管XPW信号的光谱相位非常平坦,但在整个光谱范围内通常不等于零。为了获得频谱相位的精确测量,往往需要执行如下迭代计算:

1)通过前述的FTSI算法,可以获得未知脉冲的初始时间分布 $E_u(t)$ 。通过表达式 $E_r(t) \propto |E_u(t)|^2 E_u(t)$ 可以获得参考脉冲的时间分布。对 $E_r(t)$ 进行傅里叶变换,可以得到参考脉冲的频谱 $|E_r(\omega)|^2$ 以及频谱相位 $\phi_r(\omega)$ 。

2)先前假设参考脉冲的光谱相位为零,将从光谱干涉中提取的光谱相位 $\arg[f(\omega)]$ 作为未知脉冲的初始光谱相位。实际上光谱相位为 $\arg[f(\omega)]$ 的未知脉冲产生的参考脉冲具有一定的光谱相位 $\phi_r(\omega)$ ,因此,此时未知脉冲的光谱相位应改为 $\phi_u(\omega) = \arg[f(\omega)] + \phi_r(\omega) + C$ ,其中C为色散光学元件(例如分束片)引起的关于波长恒定的光谱相位。利用新的未知脉冲的光谱相位结合未知脉冲的频谱进行傅里叶变换,可以得到未知脉冲新的时间分布 $|E_u(t)|^2$ 。

3)重复步骤1)和2)多次,即可得到待测脉冲准确的光谱相位,从而获得精确的时域分布和脉冲宽度。

由此,SRSI方法测量的关键步骤就是利用频率守恒的四波混频过程通过入射脉冲产生参考脉冲。XPW、SD和TG都是四波混频过程,可以用于提高超高峰值功率飞秒激光系统的时间对比度<sup>[47, 53, 54]</sup>。产生的XPW信号、SD信号和TG信号的性质表明,这些四波混频过程都能满足SRSI方法中产生参考脉冲的要求。图35为XPW、SD和TG过程的原理。

图35(a)为XPW的原理。线偏振脉冲聚焦到BaF<sub>2</sub>晶体中,产生偏振垂直于入射脉冲的XPW信号。通过在BaF<sub>2</sub>晶体后放置偏振器将产生的XPW信号与入射脉冲分离。XPW是一种自相位匹配、偏振非简并、频率简并的四波混频过程。图35(b)为SD效应的原理,来自单个入射激光脉冲分出的两束光聚焦到具有小

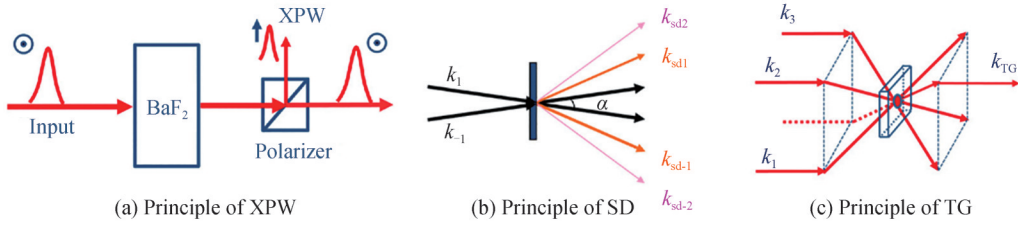


图 35 XPW,SD 和 TG 的原理  
Fig. 35 Principles of XPW, SD, TG

交叉角的透明介质中,除了在介质另一侧的两个透射的入射光束外,还产生 SD 信号。当入射脉冲能量足够高时,也会产生更高阶级联 SD 信号,因为 SD 是频率简并的级联四波混频过程<sup>[55]</sup>。图 35(c)为 TG 过程的原理,该过程需要三束入射激光,这使得 TG 的光路设置变得复杂。然而,TG 过程是一个自相位匹配的过程,因为使用了 BOXCARS 的光束几何结构<sup>[56]</sup>。此外,与 XPW 和 SD 过程相比,TG 过程对入射脉冲的能量更为敏感,因此可以扩展到测量弱能量脉冲领域<sup>[57]</sup>。

XPW、SD 和 TG 都是三阶非线性过程。因此,所产生的脉冲的频谱和时间分布由式(5)和(6)确定,即

$$I_r \propto I_u^2(t) I_u(t - \tau) \quad (5)$$

$$I_r(\omega_r) \propto \left| \iint d\omega_1 d\omega_{-1} \chi^{(3)} \tilde{E}_1^*(z, \omega_1) \tilde{E}_{-1}(z, \omega_1) \tilde{E}_1(z, \omega_r - \omega_{-1} + \omega_1) \sin[\Delta k(\omega_r, \omega_1, \omega_{-1})L/2] \right|^2 \quad (6)$$

在这些响应时间为几百飞秒的超快参量过程中,因为信号脉冲的强度与入射脉冲强度的立方成正比,产生的信号脉冲的时间轮廓被过滤,频谱和频谱相位得到了平滑。式(6)表明所产生的参考脉冲的频谱被平滑和展宽,因为它是入射脉冲的频谱的积分,即平均贡献。

### 5.1 SD-SRSI

虽然 XPW 可以应用于 SRSI 方法中,但偏振器的使用限制了可测量的光谱范围,并且会对入射脉冲引入额外的色散。这种限制与在脉冲清洗中使用 XPW 效应时发生的限制相同,在脉冲清洗中,偏振器由于其消光比限制了时间对比度的改善。最近,在 XPW-SRSI 方法中使用了反射偏振器来解决这个问题<sup>[57]</sup>。2010 年,研究人员使用了不需要偏振器的 SD 过程,以在时间对比度方面获得更大的改善<sup>[47]</sup>。因为不使用偏振器,在 SRSI 方法中使用 SD 效应,可以消除由偏振器引起的限制。SD 过程是一个非共线四波混频参量过程,但不是一个自相位匹配过程。为了满足 SD 过程的宽带相位匹配,需要选择一种较薄的非线性介质。图 36(a)、(b)分别显示了波长为 800 nm 的脉冲在 0.1 mm 厚的熔融石英玻璃中和波长为 400 nm 的脉冲在 0.1 mm 厚的 BaF<sub>2</sub> 中的 SD 二维相位匹配图案。可以看到在 800 nm 处的位相匹配光谱范围比有着近一个倍频程的宽度,这可以支持亚 5 ps 激光脉冲的相位匹配。

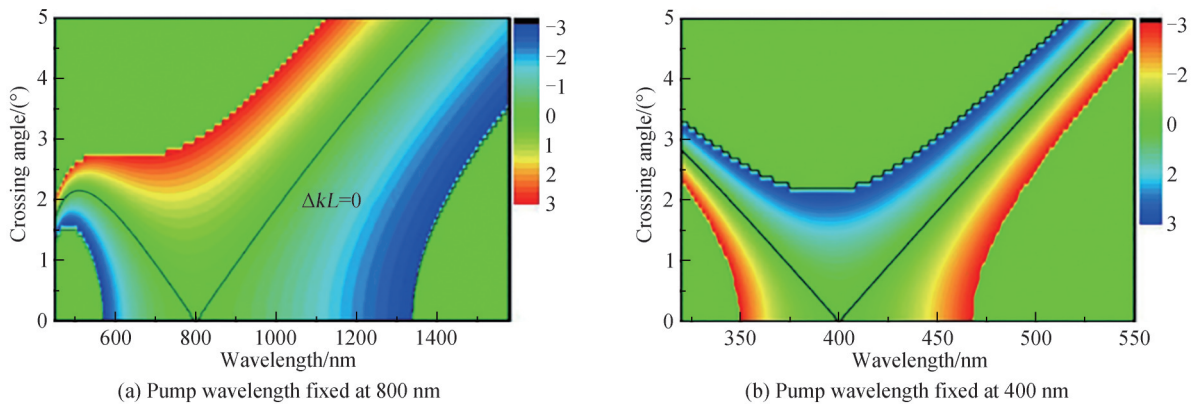


图 36 二维相位失配图案,黑色实线对应零相位失配<sup>[58]</sup>  
Fig. 36 Two-dimensional phase-mismatch pattern, the black solid line corresponds to zero phase mismatch<sup>[58]</sup>

使用图 37 中提出的 SD-SRSI 实验装置,对中心波长为 800 nm 和 400 nm 的脉冲分别进行了实验表征。分束片 BS2 用于分离待测脉冲。产生的 SD 参考脉冲通过另一个分束片与待测脉冲共线组合。

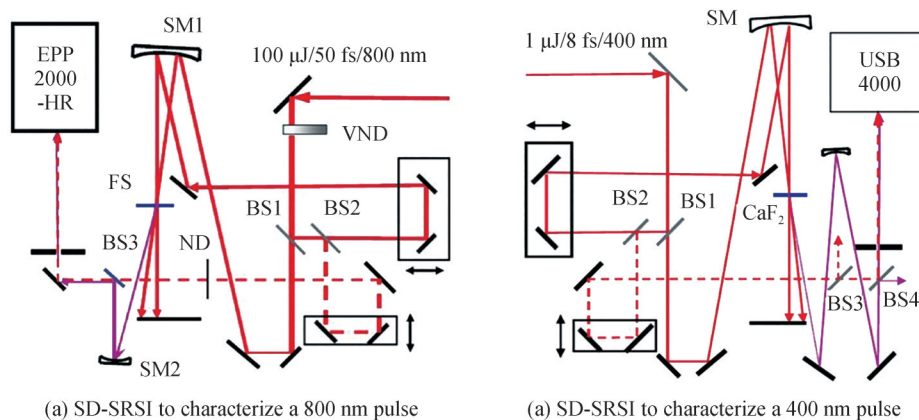


图 37 SD-SRSI的实验装<sup>[58]</sup>  
Fig. 37 Experimental setup for SD-SRSI<sup>[58]</sup>

图 38和图 39分别为使用图 37中的 800 nm 和 400 nm 实验装置测量的结果。图 38(a)、(b)为分别使用 SD-SRSI 和 SD-FROG 对中心波长为 800 nm 的脉冲测量所获得的原始数据。图 38(c)为 SD-SRSI 和 SD-FROG 检索到的待测脉冲的频谱和频谱相位,其中 SD-SRSI 获得的重建频谱与光谱仪直接测量的频谱非常一致。图 38(d)表明,SD-SRSI 与 SD-FROG 的重建脉冲时域结构几乎一致,两脉冲的持续时间都约为 55 fs。

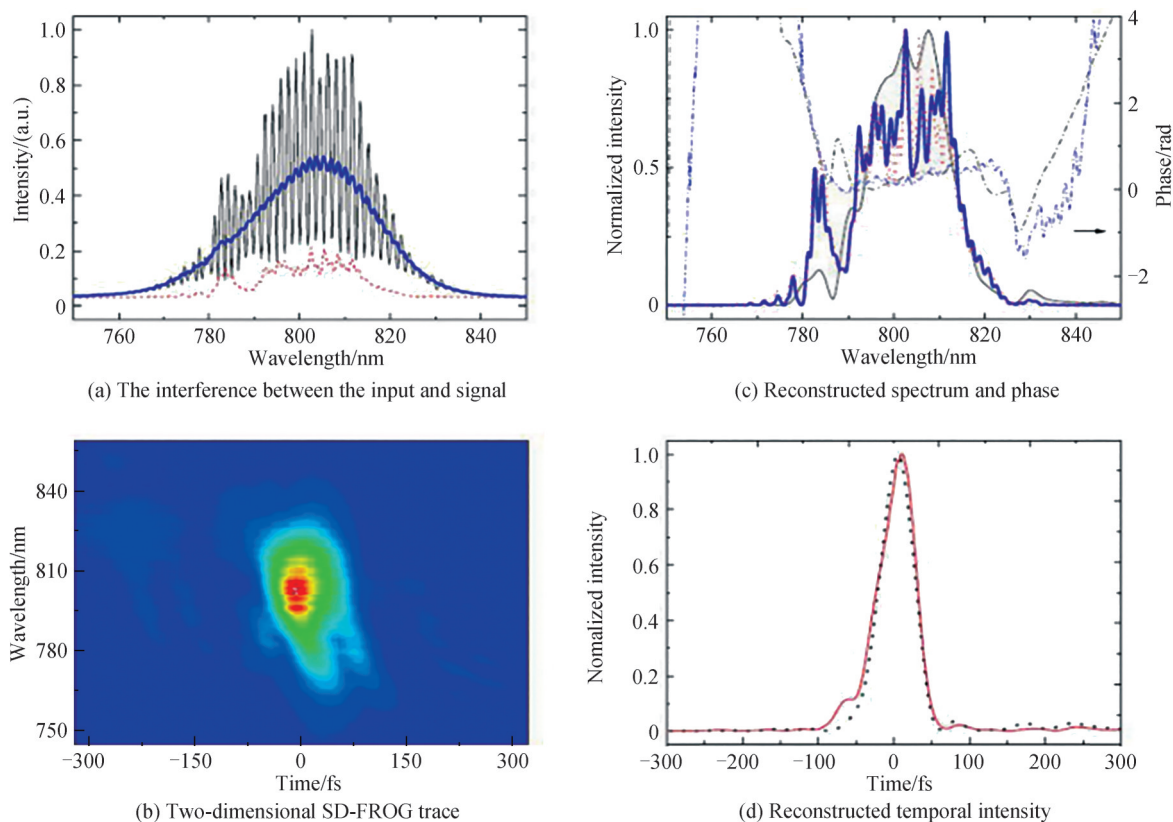


图 38 装置的测试结果<sup>[58]</sup>  
Fig. 38 Measurement results of the device<sup>[58]</sup>

图 39(a)、(c)为分别使用 SD-SRSI 和 SD-FROG 对中心波长为 400 nm、亚 10 fs 的脉冲测量所获得的原始数据。图 39(b)、(d)为 SD-SRSI 和 SD-FROG 检索的未知脉冲频谱和频谱相位。这表明即使是中心波长在 400 nm 处的小于 10 fs 的脉冲也可以使用该装置来测量。然而,光路设置是相对复杂的,因为需要三个分束器来将入射脉冲分为三束。通过使用简单的固定孔将光束一分为三来简化设置。

实验表明,由于 SD 是一个需要满足相位匹配条件的非共线光学参量过程,因此 SD 信号具有明显的角度调

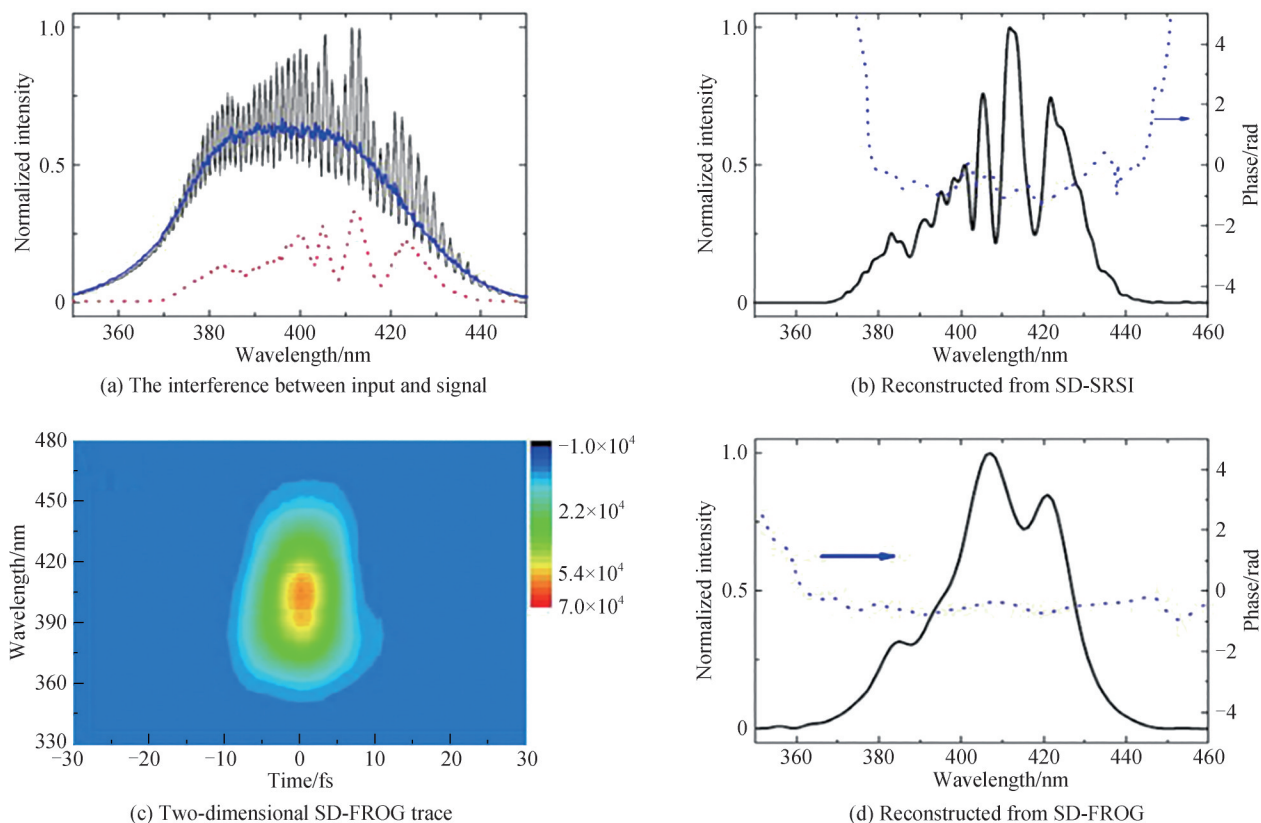


图 39 装置测试结果<sup>[58]</sup>

Fig. 39 Measurement results of the device<sup>[58]</sup>

啾。图 40 展示了 SD 信号典型的角啾。如果选择产生的 SD 信号的不同部分作为参考脉冲,其空间色散会使参考脉冲的频谱互不相同,这将会给测量结果带来误差。在 SD 过程中,这种角啾是不容易消除的。

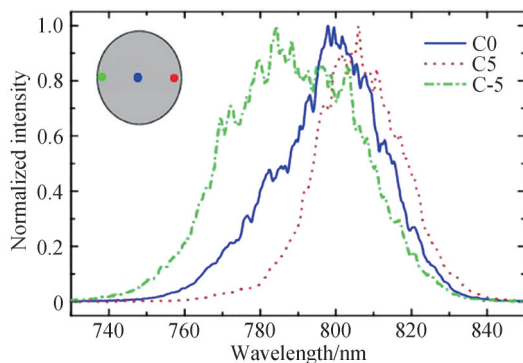


图 40 在光束的 C0、C5 和 C-5 三个不同位置测得的 SD 光谱<sup>[53]</sup>

Fig. 40 SD spectra measured at three different positions on the beam, C0, C5, and C-5<sup>[53]</sup>

与 XPW-SRSI 装置相比,SD-SRSI 方法有以下缺点:1)SD 过程需要满足相位匹配关系,并且需要一个相对较薄的非线性介质,而 XPW 过程是自相位匹配的;2)SD 过程需要一个非共线的几何结构和两个入射光束,这使得光路设置相对复杂。此外,两束光必须仔细校准并稳定同步;3)由于 SD 过程需要薄的非线性介质和非共线几何结构,对于相同时间结构的脉冲,其非线性效率将低于 XPW 过程。另一方面,SD-SRSI 方法具有以下优点:1)由于不需要使用偏振器,SD-SRSI 方法在光谱范围和脉冲宽度测量方面受到的限制较小。因此,它可以用一个光学装置来测量更宽光谱范围内(从紫外到中红外)的较短脉冲;2)通过使用 SD-FROG,它可以同时测量具有较大啾的脉冲;这是使用 XPW-SRSI 方法无法实现的;3)由于 SD 效应存在于所有三阶非线性介质中,因此不需要考虑双折射。较低能量的入射脉冲应使用极化率较高的三阶非

线性介质。

## 5.2 TG-SRSI

XPW-SRSI受偏振器的限制,SD-SRSI受SD过程中相位匹配或角度啁啾的限制。TG效应也是一种频率守恒的四波混频过程,并且已被用于TG-FROG脉冲表征。TG过程是自相位匹配的,不需要偏振器。此外,TG信号是没有空间或角度啁啾的,如图41,TG信号不同位置的光谱都具有几乎相同的轮廓,这表明生成的TG信号中的角色散可以忽略不计。此外,在500  $\mu\text{m}$ 厚的熔融石英玻璃的TG过程中,当交叉角从 $2^\circ$ 增加到 $6^\circ$ 时,没有产生明显的角色散。

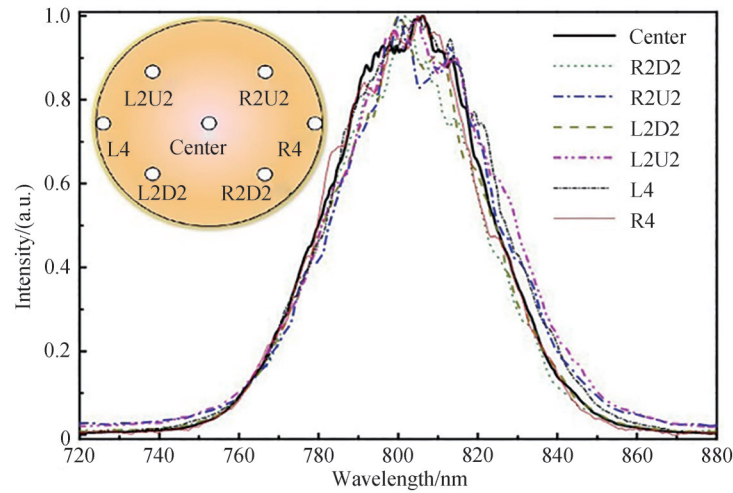


图41 TG信号光束上七个不同点的光谱<sup>[59]</sup>

Fig. 41 TG signal spectra at seven different points on the beam<sup>[59]</sup>

这些特性使得TG过程适用于SRSI方法,并且避免了XPW-SRSI和SD-SRSI中偏振器和角度啁啾的限制。TG-SRSI的原理如图42。将待表征的未知脉冲通过光阑分成四束,其中一束经过能量衰减、时间延迟后,作为待测光束。它和其他三束光束聚焦在很薄的透明熔融石英玻璃上,呈BOXCARS几何形状,这三束光在时间和空间上重叠。产生的TG信号与待测光束的方向相同,因此该系统的光学设置是无对准的。

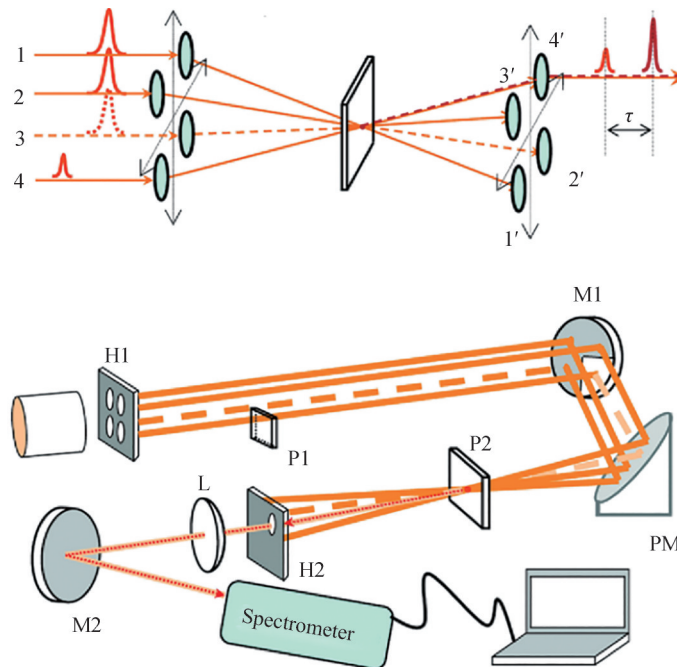


图42 TG-SRSI原理<sup>[59]</sup>

Fig. 42 Principle of TG-SRSI<sup>[59]</sup>



## 5.2.1 AR-TG-SRSI

基于一种全反射式 TG-SRSI(AR-TG-SRSI),可以搭建一个简单的、几乎无对准的装置,尺寸约为  $290\text{ mm}\times 170\text{ mm}\times 80\text{ mm}$ 。由于采用的是镀金属膜的反射镜以及非常薄的熔融石英玻璃,因此该装置能够测量从深紫外(DUV)到中红外的极宽带宽的光谱。由于该装置中除了克尔介质外,没有使用其他色散光学元件,同时 TG 过程是一个自相位匹配、频率守恒的三阶非线性过程,因此该装置的测量不受带宽的限制。同时,很薄的克尔介质引起的色散可以忽略不计,它也可以用于几个周期的飞秒脉冲的表征。使用该装置成功地对  $800\text{ nm}/5.0\text{ fs}$  的脉冲和  $1\ 800\text{ nm}/14.3\text{ fs}$  的脉冲进行了表征。即使中心波长不同,该装置也可以作为实时监测装置应用于不同的激光系统,并通过反馈优化来改善激光系统的激光脉冲输出。

图 43 为 AR-TG-SRSI 装置的光路结构。用一个带有四个相同大小的孔的光阑板将输入光束分成四个几乎相同的光束 1、2、3 和 4,四个孔的中心呈一个正方形。然后,这四束光被一个特别设计的反射镜反射。该反射镜由两块粘在一起的反射镜“a”和“b”组成。“a”为镀金属膜的 L 形反射镜,而“b”是未镀膜的反射镜,其反射面与反射镜“a”平行,且有固定的间隔距离。未镀膜的反射镜“b”将引入固定的时间延迟,并且衰减光束 4 的强度将其作为待测脉冲。FH2 是第二个四孔光阑,用于光路对准。在 FH1 和 FH2 的配合下,可以灵活地对准入射激光脉冲的方向。SM 是另一种特殊设计的金属镀膜反射平面镜。中心带孔的反射镜 SM 可以通过下一个凹面镜 CM1 的聚焦光。所有四束光束都反射到凹面镜 CM1 上,然后通过镜面 SM 的中心孔聚焦到一块薄的透明平板 KP 上。在 CM1 中,输入和输出光束之间的交叉角为零,这意味着在这个焦距过程中没有像差。这种垂直会聚排列使四束光束在空间结构上保持了较好的均匀性,从而使得四束光束很容易在 KP 中实现与相干反斯托克斯拉曼光谱(BOXCARS)光束几何相同的空间结构,并产生 TG 信号。

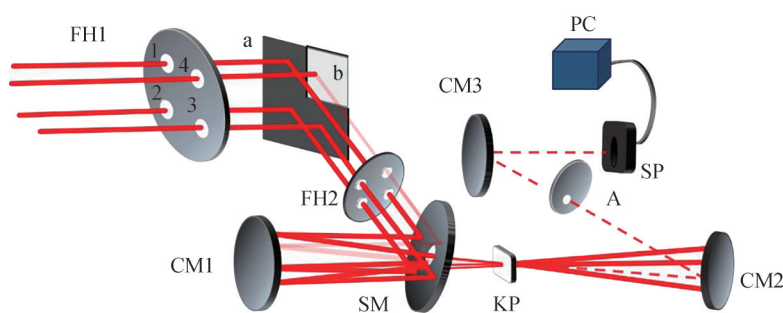


图 43 AR-TG-SRSI 光路<sup>[60]</sup>  
Fig. 43 Optical layout of AR-TG-SRSI<sup>[60]</sup>

根据 TG 过程的自相位匹配原理,产生的 TG 信号与待测脉冲方向相同。CM2 被用来准直所有的光束。组合的未知待测脉冲和 TG 信号通过光阑 A 选出,然后用 CM3 聚焦到光谱仪 SP 中。由于在 TG 信号和未知待测脉冲之间存在适当的时间延迟和适当的强度比,SP 可以获得清晰的光谱干涉图。然后,可以通过 FTSI 算法来检索未知待测脉冲的时间分布。

基于上述光路设置,可以设计一种紧凑、坚固且无需对齐的测量装置。该装置示意图及实物如图 44。图 44(a)中,套筒 S 长  $38.10\text{ mm}$ ,前表面附有 FH1,并带有三个窄槽。四个几乎相同的孔的直径为  $3\text{ mm}$ ,四个孔的中心形成一个边长约为  $4.2\text{ mm}$  的正方形。凹槽用于放置和固定不同的挡光板,方便调整光路。反射镜 M 的未镀膜“b”区域以小于  $5^\circ$  的角度平行于镀膜区域“a”的前表面,并且薄了约  $100\ \mu\text{m}$ ,以获得清晰的光谱干涉图。这种结构在不引入任何啁啾的情况下,实现了对光束 4 的能量衰减和相对时间延迟的简单调整。同时将“b”区域的透射光引到装置外部,防止其他反射产生的散射噪声影响测量结果。三阶非线性介质 KP( $0.15\text{ mm}$  厚的熔融石英玻璃)固定在具有一定长度螺纹的  $26.20\text{ mm}$  套筒 T 中,通过调整 T 可以找到 TG 过程在 CM1 焦点( $f=100\text{ mm}$ )周围的完美位置。此外,三阶非线性介质 KP 可以通过两个旋钮垂直和水平移动,以避免由于焦点周围的脉冲强度过大而产生的缺陷点。CM2( $f=100\text{ mm}$ )用于准直所有光束。光束 4 方向上的未知脉冲和 TG 信号可以通过光阑 A 选出,然后由焦距为  $75\text{ mm}$  的 CM3 聚焦到 SP 中。该装置的尺寸约为  $290\text{ mm}\times 170\text{ mm}\times 80\text{ mm}$ ,平面尺寸甚至比 A4 纸还小,可作为飞秒脉冲测量设备或飞秒激光放大器系统内部的监控设备,以提高不同实验的准确性和效率。

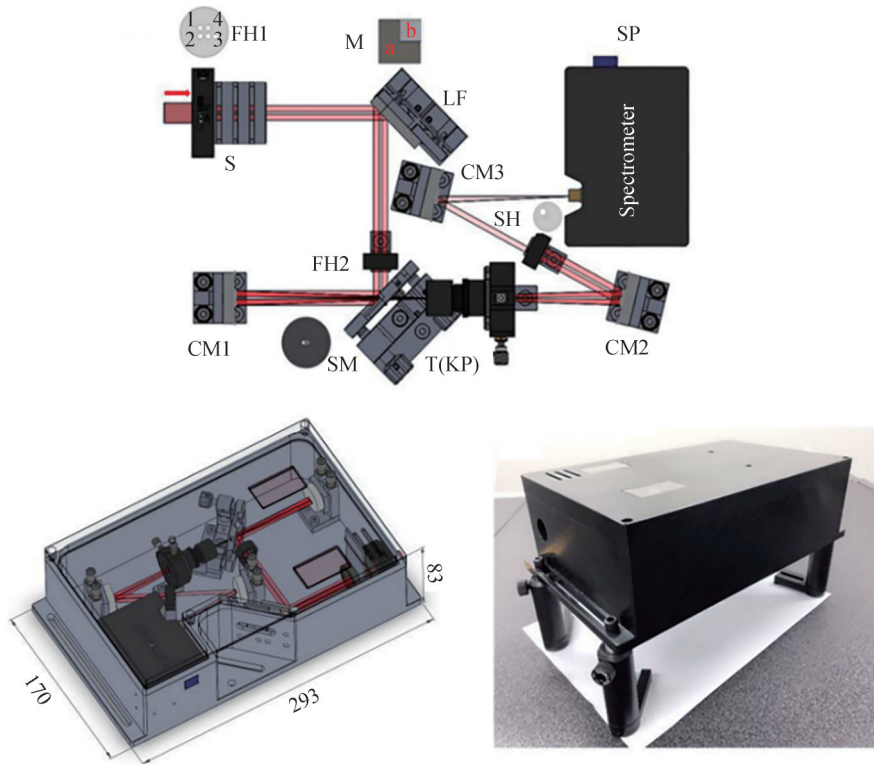


图 44 AR-TG-SRSI 装置<sup>[60]</sup>  
Fig. 44 Sketch of the AR-TG-SRSI<sup>[60]</sup>

通过新型 AR-TG-SRSI 装置分别成功地测量了 800 nm 处的 5 fs 脉冲和 1 800 nm 处的 14.31 fs 脉冲, 结果如图 45。在图 45(a)、(d) 展示了光谱干涉图、待测脉冲和由光谱仪直接测量的 TG 信号的光谱强度, 其中产生的参考脉冲的光谱带宽比未知输入脉冲的光谱带宽更宽、更平滑。在图 45(b)、(e) 展示了待测脉冲直

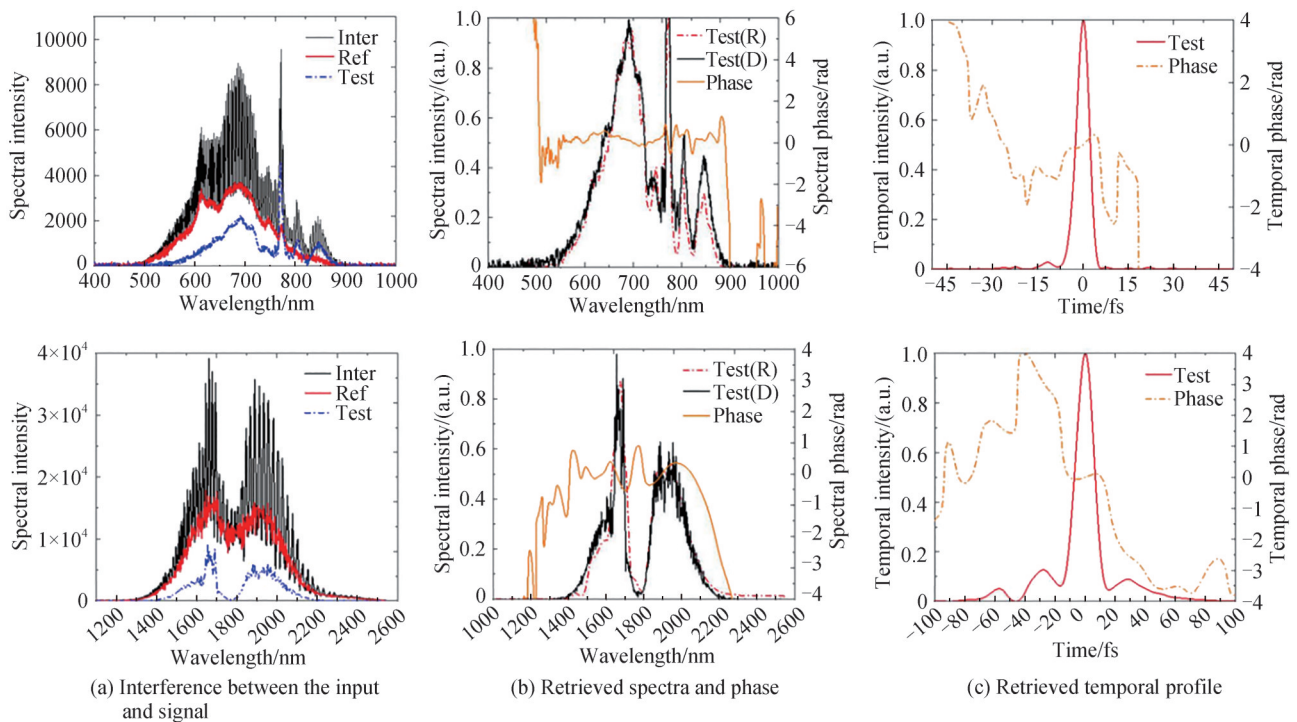


图 45 装置的测试结果<sup>[60]</sup>  
Fig. 45 Measurement results of the device<sup>[60]</sup>

接测量的光谱与检索到的光谱以及光谱相位,未知输入脉冲的反演光谱与直接测量的光谱非常吻合。这两个结果都符合使用SRSI进行校正测量的标准。图45(c)、(f)展示了应用FTSI算法重建的未知输入脉冲的时间结构。值得注意的是,只需将光谱仪由USB4000更改为NIRQuest512-2.5(海洋光学),即可在1800 nm处检测光谱,而无需更改设备的其他部分。

### 5.2.2 Enhanced TG-SRSI

由振荡器或非共线光参量放大器产生的微弱飞秒脉冲(亚到数纳焦耳)被广泛应用于探索生物和化学领域中的超快现象。在这些应用中,准确和完整的脉冲时间特性是至关重要的。为了扩展SRSI方法在弱脉冲表征领域内的应用,进一步拓展了TG-SRSI技术。因为与SD和XPW过程相比,TG过程对能量相对更为敏感<sup>[57]</sup>,如表1。在使用全反射式TG-SRSI的基础上,成功对能量<100 nJ的飞秒脉冲进行了表征<sup>[61]</sup>。然而,该能量仍远未达到亚纳焦耳水平,因此AR-TG-SRSI不能用于表征来自振荡器的飞秒脉冲。此外,在TG-SRSI的应用中,像传感器一样为高性能水平的相对紧凑的设备是十分重要的。

表1 XPW,SD和TG过程的比较<sup>[57]</sup>  
Table 1 Comparison of XPW, SD, and TG processes<sup>[57]</sup>

| Geometry                  | PG(XPW)             | SD                      | TG  |
|---------------------------|---------------------|-------------------------|---|
| Sensitivity (multi-shot)  | ~100 nJ             | ~1 000 nJ               | ~10 nJ  |
| Sensitivity (single shot) | ~1 $\mu$ J          | ~10 $\mu$ J             | ~0.1 $\mu$ J                                      |
| Advantages                | Self-phase-matching | Deep UV capability      | Background free; Sensitive;<br>Deep UV capability |
| Disadvantages             | Require polarizers  | Non-self-phase-matching | Three beams                                       |

设计小于手掌大小的光学装置用于表征亚纳焦耳飞秒脉冲有三个关键点:1)选择TG过程来产生参考脉冲,因为TG过程对能量具有相对较高的灵敏度;2)使用具有相对较高三阶非线性极化率的非线性介质;3)最重要的是,使用具有紧密焦距的对称聚焦和准直抛物面镜对,以使非线性介质中的焦强度尽可能的高,使用一对对称抛物面镜将简化设置并易于对齐。

增强型TG-SRSI装置光路如图46。输入的未知脉冲由一个特殊镀膜的反射镜(M1)反射,其中四分之三的前表面镀有高反射率膜,其余区域没有镀膜,如图46中插图“a”所示。输入的未知激光束可被视为分别从M1的1、2、3和4区域反射的四束光束。前三束是产生TG参考光束的相同入射光束,光束4被无镀膜的玻璃表面显著衰减,用作待干涉的待测脉冲。离轴抛物面铝镜(PM1)的有效焦距仅为25.4 mm,可聚焦四束光束。当光束1、2、3同时被PM1聚焦到0.15 mm厚的非线性YAG(P2)中时,产生TG参考脉冲。当p偏振未知脉冲在M1上的入射角约为45°时,光束4即输入未知脉冲被M1的未镀膜区域衰减。将0.5 mm厚的熔融石英玻璃(P1)插入光束4的光路中,以在参考脉冲和未知待测脉冲之间引入时间延迟 $\tau$ 。当P1的镀膜具

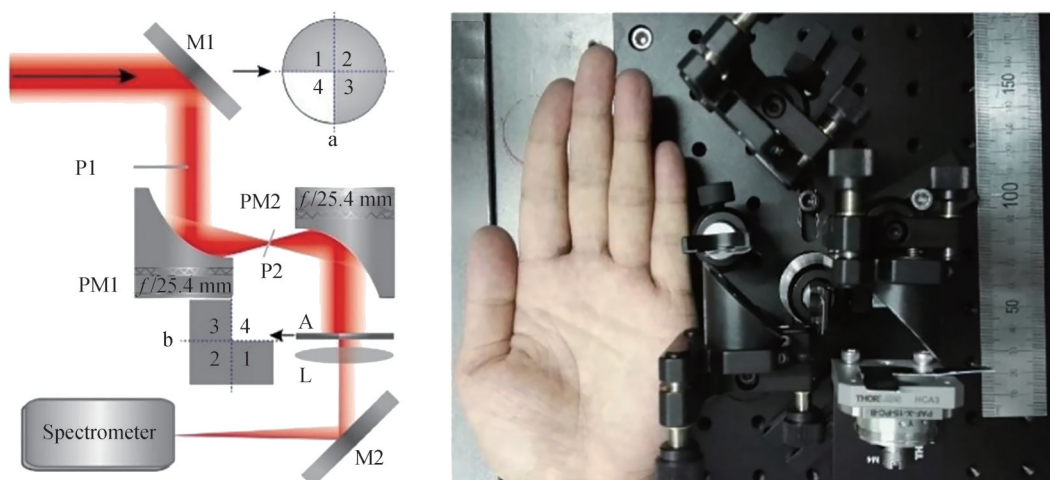


图46 增强型TG-SRSI装置<sup>[62]</sup>  
Fig. 46 Setup of enhanced TG-SRSI<sup>[62]</sup>

有不同的反射比时, P1可以将光束4衰减到一定值。在P2之后,另一个离轴抛物面铝镜(PM2)与PM1具有相同的25.4 mm有效焦距,对称地准直光束。由于TG过程的BOXCARS光束几何结构,未知待测光束和参考光束自动位于同一方向<sup>[59, 61]</sup>。对称抛物面镜对和BOXCARS几何结构都使得装置易于对齐。未知待测光束和参考光束通过透镜(L)和高反射率镜(M2)过滤并聚焦进光谱仪中。

图47为使用增强型TG-SRSI测量能量仅为0.48、0.60、0.71 nJ脉冲的结果。重建的脉冲光谱与光谱仪直接测量的光谱非常匹配,如图47(a)。产生的参考脉冲的频谱比输入未知脉冲的频谱更宽、更平滑,这证明了该装置测量结果的可靠性。图47(b)为0.48 nJ脉冲的重建时间结构和相位,其脉冲持续时间约为26.3 fs。对数尺度上重建的时间强度图(图47(c))显示了 $\pm 400$  fs时间范围内的50 dB动态范围。图47(d)为0.48、0.60、0.71 nJ脉冲表征结果中脉宽随时间的波动。每条曲线由200个测量结果组成。

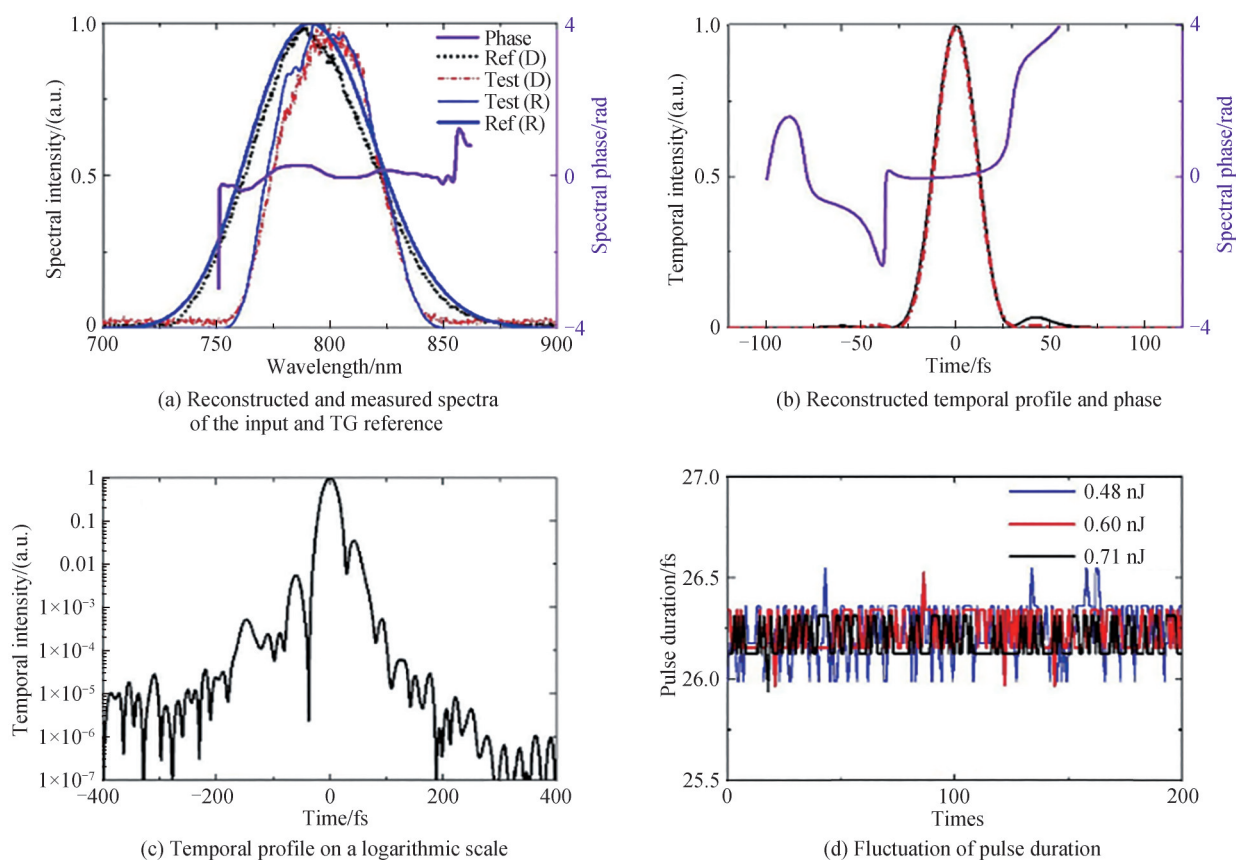


图47 重复频率为84 MHz的飞秒脉冲的表征<sup>[62]</sup>  
Fig. 47 Characterization of femtosecond pulses at 84-MHz repetition rates<sup>[62]</sup>

### 5.2.3 FASI

SRSI要求产生的参考脉冲的频谱必须比待测脉冲的频谱宽,以便正确地测量脉冲特性,这限制了SRSI只能对压缩良好的脉冲,甚至是近傅立叶变换受限脉冲进行测量<sup>[51]</sup>。这种技术无法正确表征脉冲宽度超过傅里叶变换受限脉冲持续时间两倍的啁啾脉冲<sup>[51]</sup>。本课题组开发了一种新型的简单测量装置FASI(频率分辨光学选通和自参考光谱干涉法)<sup>[63]</sup>,它将FROG和SRSI结合在一个装置中,并且两者都是基于TG的三阶非线性效应<sup>[60]</sup>。该装置具有TG-SRSI方法的优点,可以在单发模式下表征从紫外到中红外的宽光谱范围的小周期脉冲。此外,对于复杂或大啁啾脉冲,该装置还可以使用多发TG-FROG模式完成表征任务。

FASI装置光路如图48。待表征的入射脉冲被一块在正方形的四个顶点上分布有四个相等大小孔的板(FH1)分成四个直径相等的光束。这四束光被反射镜M1反射到四分之三镀银膜的反射镜M2。M1由镀银膜的a、b和未镀银膜的c三部分组成。三部分相互平行,a和c粘合在一起,前表面之间的距离约为100  $\mu\text{m}$ ,b安装在压电平移台(P112S,辽宁研生)上,平移台分辨率为1 nm,行程范围为200  $\mu\text{m}$ 。之后四束光穿过另一个四孔板(FH2),与FH1相同,用于对准入射光束。使用中心有孔的镀银膜反射镜(SM)将光束反射到镀银

凹面镜(CM)。聚焦光束穿过SM中心的孔,进入透明薄板KP(0.15 mm厚的熔融石英)以产生TG信号。透镜L1准直所有光束。单孔板S过滤KP中产生的TG信号(适用于TG-SRSI和TG-FROG)和待测脉冲(仅适用于TG-SRSI),该待测脉冲经过时间延迟并通过M1中的c部分以及M2中的未镀膜区域f反射衰减。另一个透镜L2将从S过滤的信号聚焦到光谱仪中。M3、M4和M5均为镀银反射镜。

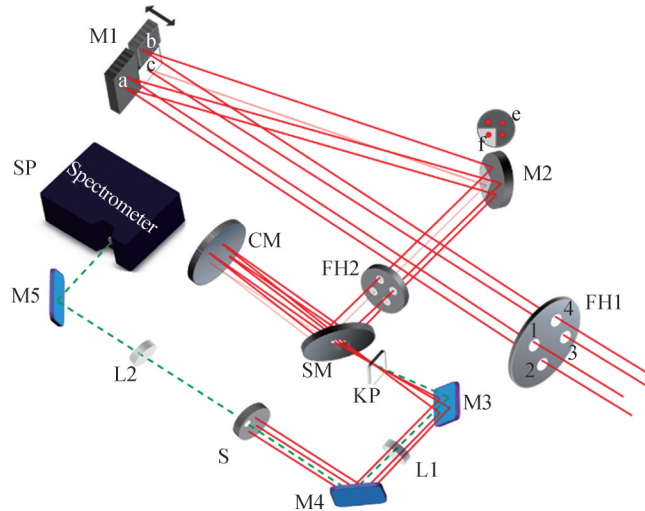


图 48 FASI光路原理示意<sup>[64]</sup>  
Fig. 48 The schematic of FASI<sup>[64]</sup>

在TG-SRSI模式下,通过调整压电平移台使M1的a和b部分位于同一平面上。光束1、2、4由M1中的a和b部分以及M2中的镀膜区域e反射用于生成KP中的TG信号。a和c的前表面之间有大体100 μm的距离,光束3通过被M1中的c部分反射与产生的TG信号引入一定的延时。同时光束3也通过未镀膜的M1的c区域和M2的f区域反射而衰减,以作为待测脉冲。由于四束光呈BOXCARS几何结构,因此生成的TG信号(参考脉冲)与光束3(待测脉冲)的方向相同。然后在光谱仪中以单发模式获得参考脉冲和待测脉冲所产生的干涉图。

在TG-FROG模式下,光束3被插入的挡光板遮挡。安装在压电平移台上的M1的a区域反射的光束1、2和b区域延迟扫描的光束4用于在KP中生成所需的延时扫描TG信号。然后在光谱仪中以多次扫描模式获得TG信号的光谱与时间延迟的FROG迹图。

基于上述光路,所开发的紧凑、坚固和多功能的FASI装置如图49,基于实用性和集成性,整个装置的尺寸约为340 mm×240 mm×80 mm。

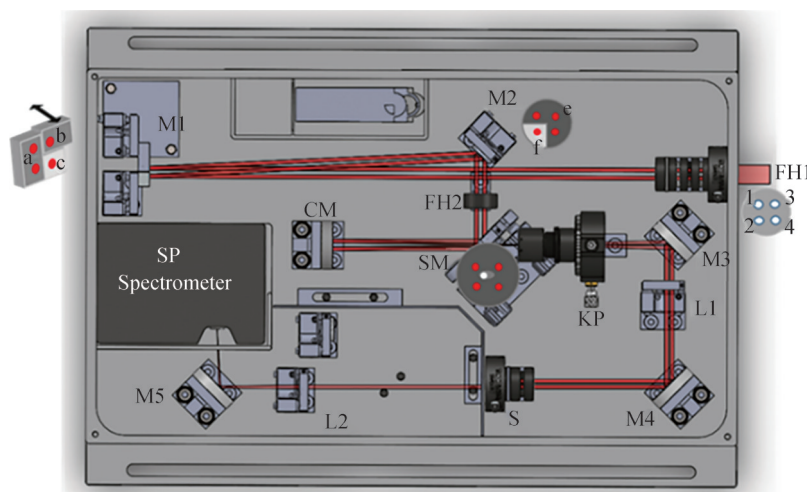


图 49 FASI设备结构<sup>[64]</sup>  
Fig. 49 The layout of the device<sup>[64]</sup>

图 50 展示了分别使用 TG-SRSI 和 TG-FROG 模式对以 800 nm 为中心的少周期脉冲测量的结果。图 50(a) 显示了在 TG-SRSI 模式下获得的干涉图(Inter)、待测脉冲(test)和参考脉冲(Ref)的光谱。很明显,参考脉冲比待测脉冲的光谱更宽。在图 50(d)中,光谱仪直接测量的待测脉冲光谱与通过 TG-SRSI 检索的光谱一致。这证明了 TG-SRSI 对脉冲的正确测量。在 TG-FROG 模式下,通过用 0.5 fs/步扫描压电平台 256 步,记录了 TG 信号的光谱分辨 FROG 轨迹,图 50(b)为记录的 FROG 轨迹图。检索到的 FROG 轨迹如图 50(c),误差为 0.006,检索到的光谱和光谱相位如图 50(d)。可以看出,两种方法反演的光谱相位非常一致。图 50(e)绘制了 TG-FROG 和 TG-SRSI 方法检索到的时域结构,FWHM 脉冲持续时间约为 8.9 fs。由于 KP 中 TG 信号的产生不受设备中其他传输光学元件的影响,因此该设备对带宽没有限制,并且不会对待测脉冲引入色散。结果表明,该装置是表征超短激光脉冲的有力工具,因为它具有 SRSI 方法的全部优点,并且还可以使用多发 TG-FROG 模式表征复杂或大啁啾脉冲。

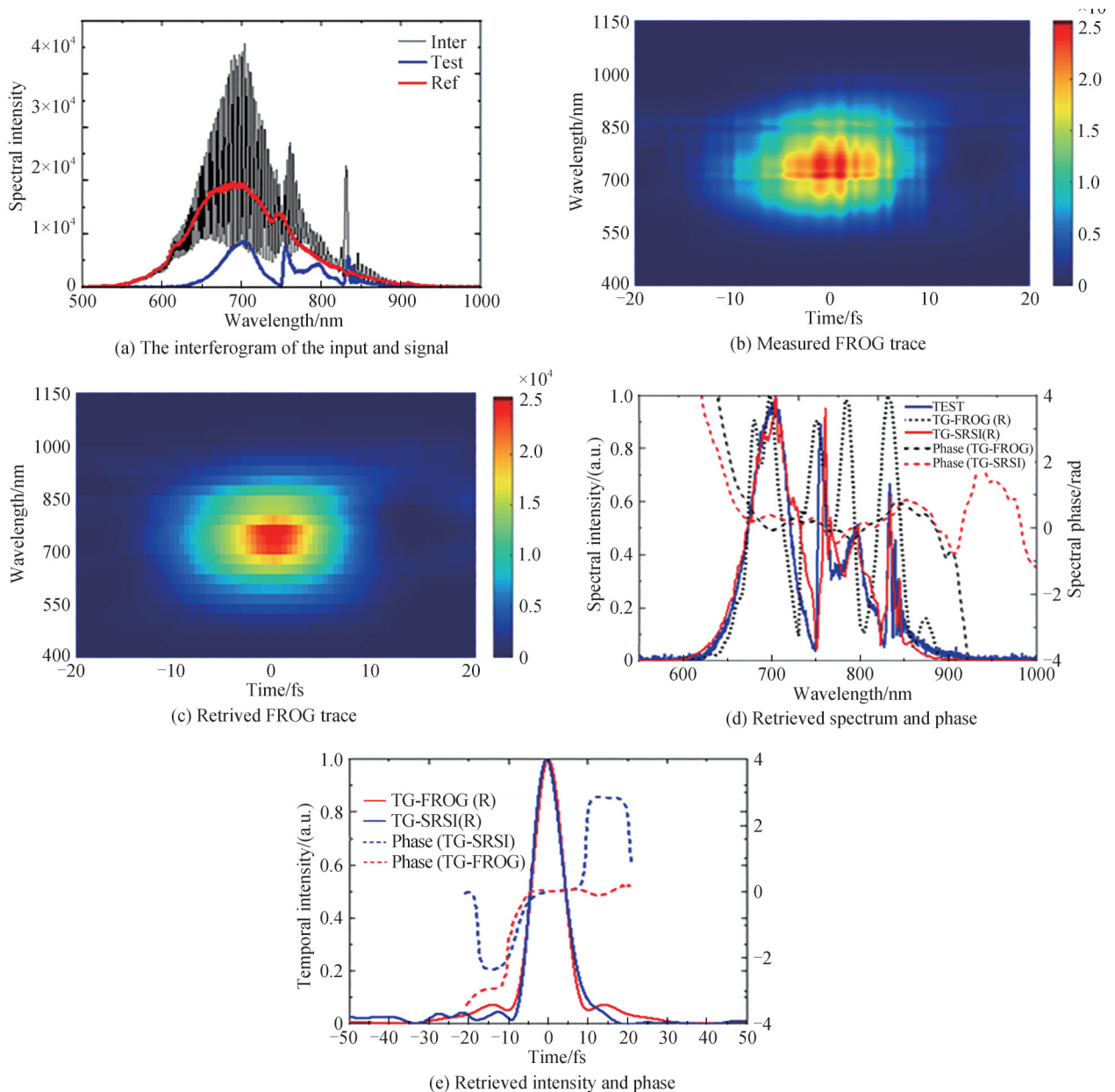


图 50 装置测试结果<sup>[64]</sup>

Fig. 50 Measurement results of the device<sup>[64]</sup>

## 6 总结与展望

超快超强激光近年来迅速发展,随着激光技术的进步可以研究的范围越来越广。包括XPW、SD、TG、CFWM、FWOPA等飞秒四波混频过程已经为超快超强激光的光谱范围拓展、高对比度种子激光产生、对比度提升和单发测量、新颖多色飞秒激光产生等多个方面的发展做出了重要贡献。未来,随着研究的深入和进一步拓展,基于四波混频的频率变换以及参量放大,一方面可能需要获得更短脉宽更高能量的多色光,比如一次性获得多个小于10 fs的高能量飞秒激光,另一方面入射光的波长范围可能进一步拓展到EUV或者THz波段,此外还可以进一步探索入射光是涡旋光场或者矢量偏振光场等特殊光场时的四波混频过程,最终获得的四波混频信号光可以服务于超快光谱探测以及超快显微成像等领域。对于四波混频脉冲净化获得种子光,需要进一步研究信号光的性能提升,比如研究角色散精准补偿,杂散噪声对脉冲时域对比度的影响,脉冲能量以及光斑模式优化等。激光脉冲表征技术也会伴随并辅助着超快超强激光的发展,对于对比度单发测量技术可能需要动态范围高到 $10^{13}$ ,时间分辨率百飞秒甚至几十飞秒量级,时间窗口百皮秒量级,对于脉宽测量需要装置更加稳定紧凑,操作更加方便,这对基于四波混频过程获得的取样光或者参考光的性能参数也会越来越高,飞秒四波混频还将继续在这些领域发挥重要作用。

### 参考文献

- [1] DANSON C N, HAEFNER C, BROMAGE J, et al. Petawatt and exawatt class lasers worldwide [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7: e54.
- [2] EICHMANN U, NUBBEMEYER T, ROTTKE H, et al. Acceleration of neutral atoms in strong short-pulse laser fields [J]. *Nature*, 2009, 461(7268): 1261-1264.
- [3] WANG W, FENG K, KE L, et al. Free-electron lasing at 27 nanometres based on a laser wakefield accelerator [J]. *Nature*, 2021, 595(7868): 516-520.
- [4] RUFFINI R, VERESHCHAGIN G, XUE S S. Electron-positron pairs in physics and astrophysics: from heavy nuclei to black holes [J]. *Physics Report*, 2010, 487(1-4): 1-140.
- [5] CARTLIDGE E. The light fantastic [J]. *Science*, 2018, 359(6374): 382.
- [6] RADIER C, CHALUS O, CHARBONNEAU M, et al. 10 PW peak power femtosecond laser pulses at ELI-NP [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2022, 10(3): 25-29.
- [7] 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.
- [8] STRICKLAND D, MOUROU G. Compression of amplified chirped optical pulses [J]. *Optics Communications*, 1985, 56(3): 219-221.
- [9] DUBIETIS A, JONUSAUSKAS G, PISKARSKAS A. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal [J]. *Optics Communication*, 1992, 88(4-6): 437-440.
- [10] CERULLO G, NISOLI M, STAGIRA S, et al. Sub-8-fs pulses from an ultrabroadband optical parametric amplifier in the visible [J]. *Optics Letters*, 1998, 23(16): 1283-1285.
- [11] CERULLO G, DE SILVESTRI S. Ultrafast optical parametric amplifiers [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2003, 74(1): 1-18.
- [12] HUANG S W, CIRMI G, MOSES J, et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics [J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(8): 475-479.
- [13] FULLER F D, OGILVIE J P. Experimental implementations of two-dimensional fourier transform electronic spectroscopy [M]. JOHNSON M A, MARTINEZ T J. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2015: 667-690.
- [14] MA X, DOSTAL J, BRIXNER T. Broadband 7-fs diffractive-optic-based 2D electronic spectroscopy using hollow-core fiber compression [J]. *Optics Express*, 2016, 24(18): 20781-20791.
- [15] ZHANG Z, HUERTA-VIGA A, TAN H S. Two-dimensional electronic-Raman spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(4): 939-942.
- [16] POLLI D, ALTOE P, WEINGART O, et al. Conical intersection dynamics of the primary photoisomerization event in vision [J]. *Nature*, 2010, 467(7314): 440-445.
- [17] LIU J, KOBAYASHI T. Cascaded four-wave mixing and multicolored arrays generation in a sapphire plate by using two crossing beams of femtosecond laser [J]. *Optics Express*, 2008, 16(26): 22119-22125.
- [18] LIU J, KOBAYASHI T. Generation of sub-20-fs multicolor laser pulses using cascaded four-wave mixing with chirped incident pulses [J]. *Optics Letters*, 2009, 34(16): 2402-2404.
- [19] LIU J, KOBAYASHI T. Generation of  $\mu$ J multicolor femtosecond laser pulses using cascaded four-wave mixing [J]. *Optics Express*, 2009, 17(7): 4984-4990.

- [20] LIU J, KOBAYASHI T. Wavelength-tunable, multicolored femtosecond-laser pulse generation in fused-silica glass [J]. *Optics Letters* 2009, 34(7): 1066-1068.
- [21] LIU J, KOBAYASHI T, WANG Z. Generation of broadband two-dimensional multicolored arrays in a sapphire plate [J]. *Optics Express*, 2009, 17(11): 9226-9234.
- [22] WANG P, LIU J, LI F, et al. Generation of high-energy tunable multicolored femtosecond sidebands directly after a Ti:sapphire femtosecond laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(20):201901.
- [23] WANG P, LIU J, LI F, et al. Multicolored sideband generation based on cascaded four-wave mixing with the assistance of spectral broadening in multiple thin plates [J]. *Photonics Research*, 2015, 3(5): 210-213.
- [24] WANG P, LIU J, LI F, et al. Filamentation assisted generation of tunable multicolored femtosecond sidebands based on cascaded four-wave mixing [J]. *Laser Physics*, 2015, 25(5):055401.
- [25] HUANG S, WANG P, SHEN X, et al. Multicolor concentric annular ultrafast vector beams [J]. *Optics Express*, 2020, 28(7): 9435-9444.
- [26] HUANG S, WANG P, SHEN X, et al. Multicolor concentric ultrafast vortex beams with controllable orbital angular momentum [J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(6): 061102.
- [27] CRESPO H, MENDONCA J T, DOS SANTOS A. Cascaded highly nondegenerate four-wave-mixing phenomenon in transparent isotropic condensed media [J]. *Optics Letters*, 2000, 25(11): 829-831.
- [28] KIDA Y, LIU J, TERAMOTO T, et al. Sub-10 fs deep-ultraviolet pulses generated by chirped-pulse four-wave mixing [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(11): 1807-1809.
- [29] HUANG S, WANG P, SHEN X, et al. Broadband ultrashort light generation from a narrowband seed [J]. *Optics and Laser Technology*, 2022, 145:107489.
- [30] SHEN X, WANG P, LIU J, et al. Linear angular dispersion compensation of cleaned self-diffraction light with a single prism [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2018, 6:e23.
- [31] WANG P, SHEN X, ZENG Z, et al. High-performance seed pulses at 910 nm for 100 PW laser facilities by using single-stage nondegenerate four-wave mixing [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(16): 3952-5395.
- [32] YU L, XU Y, LIU Y, et al. High-contrast front end based on cascaded XPWG and femtosecond OPA for 10-PW-level Ti:sapphire laser [J]. *Optics Express*, 2018, 26(3): 2625-2633.
- [33] DORRER C, BEGISHEV I A, OKISHEV A V, et al. High-contrast optical-parametric amplifier as a front end of high-power laser systems [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(15): 2143-2145.
- [34] LUAN S, HUTCHINSON M, SMITH R, et al. High dynamic range third-order correlation measurement of picosecond laser pulse shapes [J]. *Measurement Science and Technology*, 1993, 4(12): 1426.
- [35] MA J, YUAN P, OUYANG X, et al. Demonstration of single-shot measurements of  $10^{13}$  ultrahigh-contrast pulses by manipulating cross-correlation [J]. *Advanced Photonics Research*, 2021, 2(12): 2100105.
- [36] OKSENHENDLER T, BIZOUARD P, ALBERT O, et al. High dynamic, high resolution and wide range single shot temporal pulse contrast measurement [J]. *Optics Express*, 2017, 25(11): 12588-12600.
- [37] WANG P, SHEN X, HUANG S, et al. Cross-polarized wave-generation-based single-shot fourth-order autocorrelator [J]. *Applied Optics*, 2021, 60(20): 5912-5916.
- [38] WANG P, SHEN X, LIU J, et al. Single-shot fourth-order autocorrelator [J]. *Advanced Photonics*, 2019, 1(5): 056001.
- [39] SHEN X, WANG P, ZHU J, et al. Temporal contrast reduction techniques for high dynamic-range temporal contrast measurement [J]. *Optics Express*, 2019, 27(8): 10586-10601.
- [40] DENK W, STRICKLER J H, WEBB W W. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy [J]. *Science*, 1990, 248(4951): 73-76.
- [41] SO P T C, DONG C Y, MASTERS B R, et al. Two-photon excitation fluorescence microscopy [J]. *Annual Review of Biomedical Engineering*, 2000, 2(1): 399-429.
- [42] SVOBODA K, YASUDA R. Principles of two-photon excitation microscopy and its applications to neuroscience [J]. *Neuron*, 2006, 50(6): 823-839.
- [43] LEPETIT L, CHÉRIAUX G, JOFFRE M. Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy [J]. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, 1995, 12(12): 2467-2474.
- [44] KANE D J, TREBINO R. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating [J]. *IEEE J Quantum Electron*, 1993, 29(2): 571-579.
- [45] IACONIS C, WALMSLEY I A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses [J]. *Optics Letters*, 1998, 23(10): 792-794.
- [46] LIU J, JIANG Y, KOBAYASHI T, et al. Self-referenced spectral interferometry based on self-diffraction effect [J]. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, 2012, 29(1): 29-34.



- [47] JULLIEN A, ALBERT O, BURG Y F, et al.  $10^{-10}$  temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation [J]. *Optics Letters*, 2005, 30(8): 920-922.
- [48] JULLIEN A, KOURTEV S, ALBERT O, et al. Highly efficient temporal cleaner for femtosecond pulses based on cross-polarized wave generation in a dual crystal scheme [J]. *Applied Physics B*, 2006, 84(3): 409-414.
- [49] JULLIEN A, CANOVA L, ALBERT O, et al. Spectral broadening and pulse duration reduction during cross-polarized wave generation: influence of the quadratic spectral phase [J]. *Applied Physics B*, 2007, 87(4): 595-601.
- [50] OKSENHENDLER T, COUDREAU S, FORGET N, et al. Self-referenced spectral interferometry [J]. *Applied Physics B*, 2010, 99(1-2): 7-12.
- [51] OKSENHENDLER T. Self-referenced spectral interferometry theory [J]. arXiv:12044949v1, 2012:1-37.
- [52] XU B, GUNN J M, CRUZ J M D, et al. Quantitative investigation of the multiphoton intrapulse interference phase scan method for simultaneous phase measurement and compensation of femtosecond laser pulses [J]. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, 2006, 23(4): 750-759.
- [53] LIU J, OKAMURA K, KIDA Y, et al. Temporal contrast enhancement of femtosecond pulses by a self-diffraction process in a bulk Kerr medium [J]. *Optics Express*, 2010, 18(21): 22245-22254.
- [54] LIU J, OKAMURA K, KIDA Y, et al. Femtosecond pulses cleaning by transient-grating process in Kerr-optical media [J]. *Chinese Optics Letters*, 2011, 9(5): 051903.
- [55] LIU J, KOBAYASHI T. Generation and amplification of tunable multicolored femtosecond laser pulses by using cascaded four-wave mixing in transparent bulk media [J]. *Sensors*, 2010, 10(5): 4296-4341.
- [56] ECKBRETH A C. BOXCARS: Crossed-beam phase-matched CARS generation in gases [J]. *Applied Physics Letters*, 1978, 32(7): 421-423.
- [57] TREBINO R. Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulses [M]. Boston: Springer US, 2000.
- [58] TRISORIO A, GRABIELLE S, DIVALL M, et al. Self-referenced spectral interferometry for ultrashort infrared pulse characterization [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(14): 2892-2884.
- [59] LIU J, LI F J, JIANG Y L, et al. Transient-grating self-referenced spectral interferometry for infrared femtosecond pulse characterization [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(23): 4829-4831.
- [60] SI Z, SHEN X, ZHU J, et al. All-reflective self-referenced spectral interferometry for single-shot measurement of few-cycle femtosecond pulses in a broadband spectral range [J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18(2): 021202.
- [61] SHEN X, LIU J, LI F, et al. Extended transient-grating self-referenced spectral interferometry for sub-100 ns femtosecond pulse characterization [J]. *Chinese Optics Letters*, 2015, 13(8): 081901.
- [62] SHEN X, WANG P, LIU J, et al. Compact transient-grating self-referenced spectral interferometry for sub-nanojoule femtosecond pulse characterization [J]. *Applied Optics*, 2017, 56(3): 582-586.
- [63] LI F J, ZHANG S X, LIU Q F, et al. A new multifunctional device for femtosecond pulse characterization with a wide operating range [J]. *Laser Physics Letters*, 2014, 11(1): 015302.
- [64] SHEN X, SI Z, ZHU J, et al. Broad spectral range few-cycle laser pulses characterization by using a FASI device [J]. *Optics & Laser Technology*, 2021, 137: 106810.

## Applications of Femtosecond Four-wave Mixing in Ultrafast and Ultraintense Laser Technology (Invited)

WANG Peng<sup>1</sup>, XUAN Yaping<sup>1,2</sup>, XU Yilin<sup>1,2</sup>, SHEN Xiong<sup>1</sup>, HUANG Shunlin<sup>1,2</sup>,  
LIU Jun<sup>1,2</sup>, LI Ruxin<sup>1,2</sup>

(1 CAS Center for Excellence in Ultra-intense Laser Science, State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

(2 Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** With the development of Chirped-pulse Amplification (CPA) and Optical Parametric Chirped-Pulse Amplification (OPCPA) techniques, ultrafast and ultraintense laser pulses can generate extreme physical conditions at lab such as ultrafast time, ultraintense electric field, ultrahigh magnetic field, ultrahigh temperature and ultrahigh pressure, which makes ultrafast and ultraintense laser pulses one of the most powerful tools to extend human's knowledge of the physical world. In the development of ultrafast and

ultraintense lasers, femtosecond four-wave mixing process which is a third-order process and does not need anisotropic nonlinear crystals plays an important role in many aspects. Here, the development and application of femtosecond four-wave mixing processes on ultrafast and ultraintense laser pulses are discussed. Femtosecond pulses from Ultraviolet (UV) to Near-infrared (NIR) can be generated based on the Cascaded Four Wave Mixing (CFWM), which is of great significance in ultrafast spectroscopy, ultrafast microscopy and high temporal contrast seed pulse generation. By manipulating the spectral dispersion property, the polarization property, the spatial phase, or the crossing angle of the input beams, the CFWM signal with interesting properties can be generated. In this review article, the generation of spatially separated multicolored femtosecond sidebands from UV to NIR, the generation of high-performance seed pulses with high temporal contrast based on the CFWM or self-diffraction process, and the generation of multicolor concentric annular ultrafast vector/vortex beams are demonstrated. Furthermore, based on the four wave mixing process, the generation of broadband ultrashort light pulses from narrowband seeds in transparent media can be realized. Broadband light pulses with a spectral width of hundreds of nanometers can be generated with narrowband light pulse seeds. Cross-correlator is the main method for high-dynamic single-shot temporal contrast measurement for the ultrafast and ultraintense laser pulses. Benefiting from excellent temporal domain filtering and high-energy signal generation of four-wave mixing, a single-shot Fourth-order Autocorrelation (FOAC) which consists of a four wave mixing process and a sum-frequency mixing process is developed. The signal of the self-diffraction process, or XPW process is used as the sampling pulse of the FOAC. And the stable devices with high dynamic range, wide time window, high temporal resolution, excellent measurement fidelity are combined in the proposed FOAC device, which can be helpful to investigate the temporal contrast property of high power laser pulses and realize better laser-matter interaction research. The Self-referenced Spectral Interferometry (SRSI) method with high time resolution of as high as 20 fs can also be used for the single shot temporal contrast measurement. However, the dynamic range is limited by the signal-to-noise ratio of the detector. To further improve the dynamic range, novel temporal contrast reduction techniques are proposed. The proof-of-principle experiments applying single stage of pulse stretching, anti-saturated absorption, or optical Kerr effect successfully reduce the temporal contrast by approximately one order of magnitude. The dynamic range characterization capability of the SRSI method is improved by about one order of magnitude to  $10^9$ . To characterize the temporal profile of femtosecond pulses, the SRSI method is also an analytical, sensitive, accurate, and fast method. We have developed the Self-diffraction Effect-based SRSI (SD-SRSI) and Transient-grating (TG) Effect-based SRSI (TG-SRSI) for temporal profile characterization. The characterization of sub-10 fs pulse with a center wavelength of 1.8  $\mu\text{m}$  is demonstrated. On the basis of the TG effect, the SRSI and the Frequency-resolved Optical Gating (FROG) are combined together to further extend the measurement ability. Weak sub-nanojoule pulses from an oscillator are successfully characterized using a TG-SRSI device, and the optical setup of which is smaller than the palm of a hand. The compactness of the SRSI device makes it convenient to use in many applications, including monitoring the pulse profile of laser systems as a sensor. In the future, the femtosecond four-wave mixing processes can be extended to the EUV and THz spectral ranges, which will extend the application range of ultrafast and ultraintense laser technology.

**Key words:** Four-wave mixing; Ultrafast laser; Ultraintense laser; Pulse measurement

**OCIS Codes:** 140.7090; 190.4380; 190.4360; 190.7110; 260.7120