

# 飞秒激光在透明介质中的传输 与超连续光辐射特性

Propagation of Femtosecond Laser Pulse  
in Transparent Medium and  
Supercontinuum Emission

■ 宋晓伟 陶海岩 林景全 著



国防工业出版社  
National Defense Industry Press

# 飞秒激光在透明介质中的传输 与超连续光辐射特性

Propagation of Femtosecond Laser Pulse in  
Transparent Medium and Supercontinuum Emission

宋晓伟 陶海岩 林昊金 著



国防工业出版社

·北京·

## 内 容 简 介

本书介绍了飞秒激光超连续辐射的研究进展和物理机制以及著者近年来在飞秒激光超连续辐射领域取得的一些研究成果，其中包括飞秒激光大气及低压氮气填充毛细管中超连续辐射，飞秒激光在硫酸铜溶液以及水掺杂纳米银粒子液体中产生超连续辐射，石英玻璃及氟化钡晶体中飞秒激光成丝及超连续辐射，同时也对飞秒超连续辐射对 PIN 探测器工作性能影响效果进行了阐述。

本书可供从事与光学学科相关专业的师生以及科研人员学习和参考，也可作为光电信息科学与工程专业和应用物理专业本科生的教材。

### 图书在版编目 (CIP) 数据

飞秒激光在透明介质中的传输与超连续光辐射特性 / 宋晓伟, 陶海岩, 林景全著. —北京: 国防工业出版社, 2017.12

ISBN 978-7-118-11506-2

I. ①飞… II. ①宋… ②陶… ③林… III. ①飞秒激光—传输介质—光辐射—研究 IV. ①TN24

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (2017) 第 309423 号

※

国 防 工 业 出 版 社 出 版 发 行

(北京市海淀区紫竹院南路 23 号 邮政编码 100048)

北京京华彩印刷有限公司印刷

新华书店经售

\*

开本 880×1230 1/32 印张 5% 字数 160 千字

2017 年 12 月第 1 版第 1 次印刷 印数 1—1000 册 定价 79.00 元

---

(本书如有印装错误, 我社负责调换)

国防书店: (010) 88540777

发行邮购: (010) 88540776

发行传真: (010) 88540755

发行业务: (010) 88540717

# 前 言

飞秒激光在透明介质中成丝产生的超连续辐射有望在高精度光谱学、光学精密器件检测、光学相干层析、宽谱光探测与白光激光雷达等领域发挥重要的作用。国内外研究者对利用飞秒成丝方法在各种透明介质中产生的超连续辐射展开了大量工作，并取得了丰硕的研究成果。

本书基于飞秒激光脉冲在透明介质中成丝及产生超连续辐射的非线性物理机制，对飞秒激光脉冲在几种透明介质中传输产生超连续辐射的特性进行了系统阐述。主要内容包括，飞秒激光成丝及超连续辐射产生的物理机制，飞秒激光大气中超连续辐射的产生，低压氮气填充毛细管中飞秒超连续辐射，飞秒激光在硫酸铜溶液中产生超连续辐射，飞秒激光在水掺杂纳米银粒子液体中产生超连续辐射，石英玻璃及  $BaF_2$  晶体中飞秒激光成丝及超连续辐射产生以及飞秒超连续辐射对 PIN 探测器工作性能的影响效果等内容。具体安排如下：

第一章为绪论。介绍了国内外有关飞秒激光脉冲在三种透明介质（气体、液体及固体）中通过形成等离子体细丝产生辐射超连续的研究概况，并对几种透明介质中细丝超连续辐射过程尚存在的问题及超连续辐射的应用及研究意义进行了阐述。

第二章，从理论上对飞秒激光在介质中传输以及对超连续产生起着重要的作用的几种机制进行了介绍。这些重要的物理过程包括：自聚焦、多光子电离、等离子体散焦、强度钳制、自相位调制、锥角辐射以及三次谐波等。描述了飞秒激光在介质中传输成丝理论的三种基本模型：运动焦点模型理论、自引导模型理论和空间动态补偿模型理论。

第三章，开展了飞秒激光在大气中传输产生超连续光辐射的实验研究。分别对工作频率为 10Hz 及 1kHz 的两套飞秒激光放大系统的实验结果进行了分析和讨论。针对每套激光系统，分别研究了飞秒激光

脉冲能量、成丝用透镜焦距等实验参数对产生超连续辐射的影响，同时，对所产生的超连续光辐射进行了空间分辨的研究。

第四章，对低氮气压充气毛细管方案获得的超连续辐射进行了分析和讨论。给出了超连续辐射与等离子体区长度、氮气气压以及入射激光峰值功率关系。对低氮气压充气毛细管内等离子体丝超连续辐射的位相进行了测量，并计算了基于展宽后光谱的变换极限压缩条件下的脉冲宽度。

第五章，主要对飞秒激光在乙醇、高锰酸钾、蒸馏水以及硫酸铜溶液等几种溶液产生超连续光谱进行了实验研究。首先，对以上四种溶液的超连续光谱进行了比较研究，其次，针对硫酸铜溶液，细致地研究了飞秒激光脉冲能量、激光偏振态、成丝所使用的透镜焦距、透镜与液体池间的相对位置、溶液浓度以及溶液温度等实验因素对硫酸铜溶液产生相干超连续光辐射的影响。

第六章，实验研究了飞秒激光脉冲在纳米银粒子掺杂液体中产生的超连续光谱。研究了激光脉冲能量、激光波长、激光偏振态、等离子体丝的成丝位置，透镜焦距、以及纳米银粒子的粒径、粒子掺杂浓度等因素对所辐射出超连续光谱的影响。

第七章，对石英玻璃和 BaF<sub>2</sub> 晶体等光学材料中进行了飞秒激光成丝和超连续光谱的实验研究。研究了飞秒激光与 BaF<sub>2</sub> 晶体作用时的激光脉冲能量、激光波长、激光偏振态等因素对等离子体丝的成丝位置、超连续光谱的影响规律。

第八章，作为大气中飞秒激光等离子体丝超连续的初步应用，开展了超连续辐射对 PIN 二极管工作性能影响效果的实验研究。

第九章是全书的总结与展望。

由于作者水平有限，书中难免存在错漏之处，希望广大读者批评指正。

作者  
2017 年 10 月

# 目 录

<b>第一章 绪论 .....</b>	<b>1</b>
1.1 引言 .....	1
1.2 飞秒激光超连续辐射的研究进展 .....	4
1.2.1 气体介质中获得飞秒超连续辐射 .....	4
1.2.2 液体介质中获得飞秒超连续辐射 .....	6
1.2.3 透明固体介质中获得飞秒超连续辐射 .....	11
1.3 飞秒激光超连续辐射的应用 .....	11
1.4 飞秒激光在透明介质中产生超连续辐射的 必要性及意义 .....	12
<b>第二章 飞秒激光成丝及超连续辐射产生的物理机制 .....</b>	<b>14</b>
2.1 引言 .....	14
2.2 成丝现象中的一些主要物理机制 .....	14
2.2.1 克尔自聚焦 .....	14
2.2.2 多光子电离 .....	17
2.2.3 等离子体散焦 .....	18
2.3 等离子体丝的形成 .....	20
2.4 飞秒激光成丝主要物理模型 .....	21
2.4.1 运动焦点模型 .....	21
2.4.2 自导引模型 .....	23
2.4.3 空间动态补偿模型 .....	24
2.5 强度钳制 .....	24
2.6 超连续辐射白光的产生机制 .....	25
2.6.1 自相位调制 (SPM) .....	25
2.6.2 锥角辐射 .....	28

2.6.3	三次谐波的产生 .....	30
2.7	小结.....	32
<b>第三章</b>	<b>飞秒激光大气中超连续辐射的产生 .....</b>	<b>33</b>
3.1	引言.....	33
3.2	实验装置.....	33
3.3	实验结果及讨论.....	40
3.3.1	超连续辐射的空间分辨 .....	40
3.3.2	成丝透镜的焦距大小对超连续辐射光谱 展宽的影响 .....	50
3.4	小结.....	55
<b>第四章</b>	<b>低压氮气填充毛细管中的飞秒超连续辐射 .....</b>	<b>56</b>
4.1	引言.....	56
4.2	实验装置及方法.....	57
4.3	实验结果和讨论.....	59
4.4	小结.....	65
<b>第五章</b>	<b>飞秒激光在硫酸铜溶液中产生的超连续辐射 .....</b>	<b>66</b>
5.1	引言.....	66
5.2	实验装置.....	66
5.3	实验结果及分析.....	68
5.3.1	硫酸铜溶液作为飞秒超连续辐射产生介质的选取 .....	68
5.3.2	硫酸铜溶液浓度对超连续光谱的影响 .....	73
5.3.3	飞秒激光脉冲能量对硫酸铜溶液超连续 光谱的影响 .....	78
5.3.4	飞秒激光偏振态对硫酸铜溶液超连续光谱的影响 .....	79
5.3.5	飞秒激光聚焦位置对硫酸铜溶液超连续 光谱的影响 .....	80
5.3.6	透镜焦距对硫酸铜溶液超连续光谱的影响 .....	83
5.4	小结.....	83
<b>第六章</b>	<b>飞秒激光在水掺杂纳米银粒子液体中产生的超连续辐射 ..</b>	<b>85</b>
6.1	引言.....	85
6.2	实验装置与方法.....	85

<b>6.3 实验结果及分析 .....</b>	<b>87</b>
6.3.1 银纳米粒子浓度对超连续辐射的影响 .....	87
6.3.2 入射激光脉冲能量对超连续辐射的影响 .....	93
6.3.3 水掺杂银纳米粒子液体中的成丝起始位置 对超连续辐射的影响 .....	96
6.3.4 透镜焦距大小对银纳米粒子溶液的超连续 光谱的影响 .....	98
6.3.5 入射激光偏振状态对超连续光谱的影响 .....	100
6.3.6 波长为 400 nm 的飞秒激光在水掺杂银纳米粒子 液体中超连续辐射 .....	102
<b>6.4 小结 .....</b>	<b>108</b>
<b>第七章 石英玻璃及氟化钡晶体中飞秒激光成丝与超连续     辐射的产生 .....</b>	<b>110</b>
7.1 引言 .....	110
7.2 实验装置与方法 .....	110
7.3 实验结果及分析 .....	112
7.3.1 激光能量与偏振态对石英玻璃中成丝及 超连续辐射的影响 .....	112
7.3.2 入射激光脉冲能量对 BaF <sub>2</sub> 晶体内成丝及 超连续光谱的影响 .....	117
7.3.3 飞秒激光的偏振状态对 BaF <sub>2</sub> 晶体内成丝与 超连续辐射的影响 .....	118
7.3.4 入射飞秒线偏振光方向对 BaF <sub>2</sub> 晶体内成丝与 超连续辐射的影响 .....	122
7.3.5 成丝起始位置对 BaF <sub>2</sub> 晶体内超连续辐射 光谱的影响 .....	125
7.4 小结 .....	127
<b>第八章 飞秒超连续辐射对 PIN 探测器工作性能的影响效果 .....</b>	<b>129</b>
8.1 引言 .....	129
8.2 实验装置及方法 .....	129
8.3 实验结果及分析 .....	131

8.3.1	飞秒激光脉冲对 PIN 探测器工作性能 的影响效果 .....	131
8.3.2	飞秒超连续辐射对 PIN 探测器工作性能 的影响效果 .....	140
8.4	小结 .....	150
第九章	总结与展望 .....	151
参考文献 .....	155	
致谢 .....	161	
作者简介 .....	162	

# 第一章 绪 论

## 1.1 引 言

飞秒（Femtosecond）也称为毫微微秒（fs）。飞秒激光是人类目前在实验室条件下所能获得最短脉冲的技术手段。它以脉冲形式运转，持续时间可以短到几十 fs 甚至几个 fs，因此其具有很高的峰值功率。随着飞秒激光放大技术的发展，现在其功率已经可以达到 TW( $10^{12}$  W) 甚至 PW ( $10^{15}$  W) 量级。当超强超短激光脉冲在空气中传输时，会出现非线性克尔自聚焦现象，这使激光光束聚焦，而聚焦后的强激光脉冲会电离空气形成等离子体，等离子体又会对激光光束有散焦作用。聚焦和散焦二者不断交替作用的动态平衡使得激光脉冲能够在空气中形成很长的等离子体光丝<sup>[1-6]</sup>。图 1.1 所示为实验中拍摄的飞秒激光等离子体光丝的照片。



图 1.1 飞秒激光等离子体丝的照片(飞秒激光脉冲能量为 4 mJ, 脉冲宽度为 50 fs)

等离子体丝的演化过程如图 1.2 所示。在随着脉冲光束减成丝开始，并克服了线性衍射，空气有效电离形成等离子体丝，丝的周围被能量库所包围。尾随的次脉冲所主导弱电离形成的等离子体丝随后出现。在传输的结束处，也存在背景储藏伴随传输，能够传输比经典衍射长度更长的距离，同时在没有其他传导机制下保持窄光束尺寸。

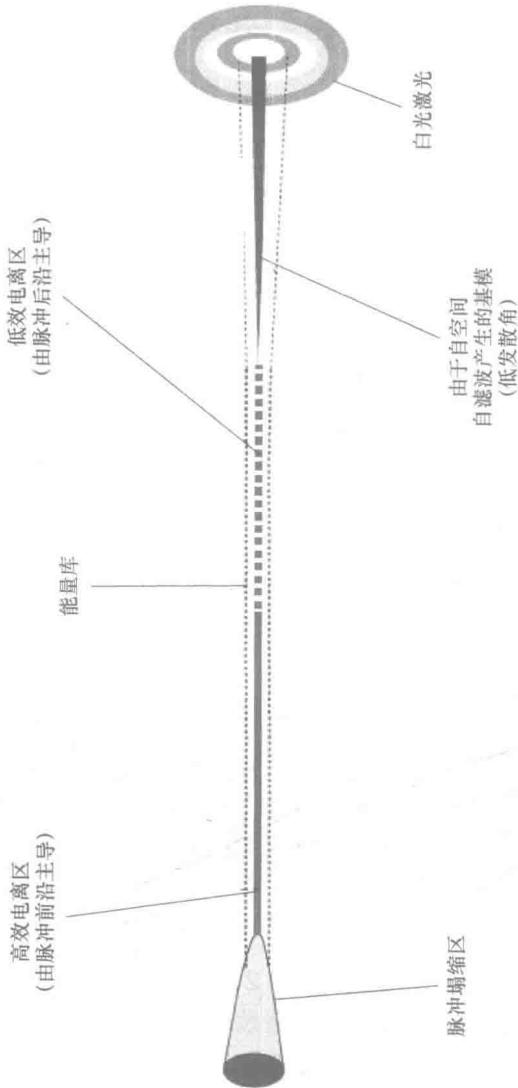


图 1.2 空气中高功率飞秒激光脉冲成丝现象演化过程的原理图<sup>[8]</sup>

当等离子体丝内的光强达到  $10^{13}\sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$  时，足以使得分子和原子发生电离。“丝”用于描述在脉冲产生弱电离等离子体通道时的部分传输。一般可得到直径为  $50\sim 100 \mu\text{m}$ ，强度钳制在  $\sim 10^{13} \text{ W/cm}^2$  的量级，长度可达几十米的等离子体丝。国外的研究表明，飞秒激光脉冲可以在空气中传输几千米甚至十几千米，并伴随着超连续白光的产生<sup>[7]</sup>。由于等离子丝以及伴随的超连续辐射有着潜在的广阔应用前景，这引起了各国科学家的高度重视，并展开了一系列的研究工作。

近几年来，各国研究学者针对飞秒激光在不同介质（固体、气体和液体）中的传输及其超连续辐射进行了诸多研究，其传输及辐射理论得到了不断的完善，出现的各种非线性和线性现象也得到了一些理论证实及解释，如自相位调制、光学自聚焦、等离子散焦、多光子电离、重聚焦等。随着理论及实验研究的进展，飞秒激光成丝的物理机制逐渐被提出，诸如自引导模型、移动焦点模型和空间动态补偿模型。

飞秒激光等离子体光丝包含的电子密度可以高达  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  量级，较自由空间比，光丝的导电性具有较大幅度的提高。因此，飞秒激光等离子体丝相当于一根隐蔽的导线，这为等离子体丝用于诱导高压放电或传输射频电磁能等方面的应用打下了基础<sup>[9]</sup>。再者，飞秒激光在大气中形成的等离子体丝有较长的距离，因此，等离子体丝可在远程诱导击穿光谱<sup>[10]</sup>、诱导水凝聚（调控天气）等方面发挥着重要的作用<sup>[11-13]</sup>。等离子体丝相当于延长了激光聚焦的瑞利长度，在非平面表面制备吸光微纳结构方面可突破以往无法在任意曲面上实现的技术瓶颈<sup>[14]</sup>。近年来，尤为引起人们关注的是，飞秒激光本身具有很宽的光谱（几十纳米），其在透明介质中传输成丝后光谱可实现大幅度的展宽，形成一种超连续的白光<sup>[15]</sup>，即白光激光。对等离子体丝传输的进一步研究发现，伴随着等离子体丝的出现，它在介质中传输一段距离后，沿着其传播的方向会使光谱展宽达到几百纳米，即其超连续光辐射覆盖了从紫外到红外很宽的光谱范围<sup>[16]</sup>。这就为许多需要宽光谱光源的场合，例如，瞬时超宽带吸收和透射光谱的测量、光学相干断层

扫描、白光激光雷达等很多应用领域提供了优质光源。飞秒激光在透明介质中的成丝传播时所辐射的超连续光谱，是目前可获得超宽光谱范围超快相干光的唯一有效途径。

## 1.2 飞秒激光超连续辐射的研究进展

### 1.2.1 气体介质中获得飞秒超连续辐射

最早对超连续辐射现象的观察记录和初步物理解释，是由 Alfano 和 Shapiro 所报道的。他们用波长为 532 nm 的皮秒激光脉冲，聚焦后通过光学玻璃和方解石晶体等介质，在前向观察到入射谱线两侧之超加宽（400~700 nm）连续谱相干光输出<sup>[17]</sup>。1983 年 Fork 等人第一次实现了飞秒超连续光谱的产生，其连续谱的范围从紫外扩展到近红外，至此飞秒超连续辐射的研究揭开了序幕<sup>[18]</sup>。但是由于在飞秒固体激光啁啾脉冲放大技术出现以前，聚焦激光光束所能取得的峰值功率难以达到成丝所要求的数值，所以，激光在透明介质中成丝并产生超连续的科学的研究并不活跃。直到 20 世纪 90 年代，随着飞秒激光技术的日益发展，1995 年美国密西根大学 A.Braun 等人率先在空气中观察到了飞秒激光电离空气成丝现象，从此飞秒激光在大气中成丝的研究工作逐步开始起来<sup>[19]</sup>。2000 年，《Optics Letters》上发表了以飞秒光丝为基础产生超连续光辐射的重要报道。J.Kasparian 和 R.Sauerbrey 等人在进行 800 nm 飞秒激光脉冲在大气中传输实验时，获得了 300 nm~4.5 μm 的超连续辐射光谱。其超连续光谱如图 1.3 所示<sup>[20]</sup>。

J.Kasparian 和 R.Sauerbrey 等人的实验结果同时表明，在不同的激光初始啁啾条件下，1~6 μm 范围内的超连续光谱强度随着激光脉冲能量的增加而增强<sup>[21]</sup>。可以这样描述超连续光辐射：当一束高强度的短脉冲通过非线性材料时，经过一系列非线性效应的共同作用，使得出射光中产生许多新的频率成分，从而使频谱得到极大展宽的一种现象。

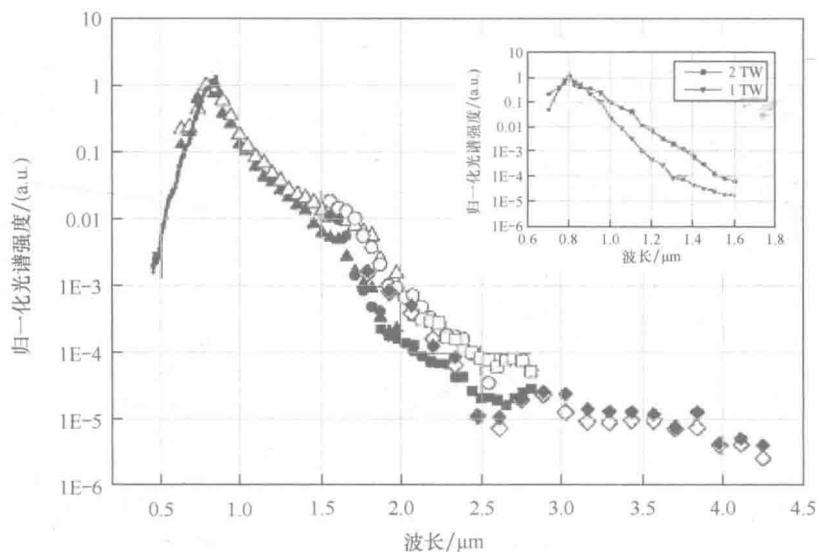


图 1.3 飞秒激光脉冲在大气中成丝的超连续辐射光谱（激光波长 800 nm）

21 世纪初期，利用飞秒激光在空气中成丝产生超连续光辐射的研究已经十分活跃。2001 年，加拿大 Laval 大学光学研究小组建立了飞秒激光脉冲在气体中非线性传播的理论模型，同时对超连续光辐射进行了数值模拟<sup>[22]</sup>。Laval 大学光学研究小组通过数值模拟和实验研究，得到了超强飞秒激光脉冲在大气中成丝并产生彩色圆环。实验中还发现环绕光丝的圆环中有蓝色羽翼部分，研究人员分析蓝色羽翼应该是自陡峭效应和强冲击波效应共同作用而形成的<sup>[23]</sup>。2002 年，Sprangle 和他的团队把拉曼散射、束缚电子与等离子体对光谱的影响综合考虑，在针对超连续光谱的理论研究上得出了激光脉冲前沿有 10% 的红移和后沿有 40% 的蓝移这一结论<sup>[24]</sup>。2003 年，美国、德国、加拿大和俄罗斯的研究人员联合在《Physical Review》杂志上发表一篇关于在气体介质中产生超连续辐射的文章。这篇论文比较全面地阐明了当时关于超连续光辐射的主要研究成果<sup>[25]</sup>。2004 年，印度学者 A.k. Dharmadhikari, F.A.Rajgara, D.Mathur 等人研究了不同带隙光学介质 ( $\text{BaF}_2$ , 水, BK-7) 的超连续谱。同年，位于加拿大的 Laval 大学的科研小组利用牛角管装置开展了飞秒激光脉冲成丝后向散射的光谱测量

实验，得到了 300 nm 左右的展宽光谱<sup>[26]</sup>。2005 年，I. Alexeev 等研究人员开展了三次谐波辐射特性的深入研究，获得了辐射的光谱频移空间分布图<sup>[27]</sup>；美国科学家 J.Kasparia<sup>[19]</sup>和他的团队，采用数值模拟和实验结合的方法，获得了展宽可以达到 220 nm~4.5 μm 的超连续辐射谱，并且得到了三次谐波辐射；加拿大 S.L.Chi 研究组开展了飞秒激光脉冲等离子体丝的时间与空间分辨的辐射实验，获得 250 nm 的光谱展宽<sup>[28]</sup>。2006 年，S.Skupin 研究组采用全新实验方法及数值模拟法，使用近红外波段飞秒激光脉冲，获得光谱展宽小于 250 nm 的超连续辐射<sup>[29]</sup>。2007 年，Alexander A.Zemlyanov 和 Yuri E. Geints 等人针对影响飞秒激光脉冲等离子体光丝超连续辐射的前向和后向散射的因素，开展了系统的数值模拟分析工作<sup>[30,31]</sup>。2008 年，中国科学院物理研究所郝作强等人针对飞秒激光脉冲在大气中成丝产生超连续光辐射的相关光谱动力学开展了深入的研究<sup>[32]</sup>；Jacques 和他的研究团队使用波长 805 nm、脉冲能量 60 mJ 的飞秒激光器，得到展宽从 200 nm~14 μm 的超宽连续谱，并分析出此实验条件下四波混频是红外波段锥状辐射的主要来源<sup>[33]</sup>；华东师范大学团队使用波长 800 nm、脉宽 30 fs 的激光脉冲在氩气体中获得了从 200~1000 nm 的超连续光辐射，并研究了激光脉冲能量、激光脉冲初始啁啾量、聚焦长度和成丝气体压强等实验条件对超连续光谱的影响作用，实验结果表明高激光脉冲能量、正啁啾、长聚焦长度和高气体压强均有利于超连续谱的展宽<sup>[34]</sup>。2009 年，J.Kasparian 研究组通过实验获得展宽从 225~1080 nm 的超宽光谱，同时得出利用切伦科夫辐射理论和 X 波形模型解释锥角辐射，比传统采用四波混频理论的效果更贴切，并且初步分析了激光转换超连续光谱的转换效率<sup>[35]</sup>。2010 年，Dominik Walter 研究组利用特殊制成的镜子，调制获得了光谱展宽从 1.5~5.3 μm 的宽红外超连续谱，之后分析了它的螺旋形结构。此项工作的开展对完善目前的光丝传输理论模型具有重要的意义<sup>[36]</sup>。

## 1.2.2 液体介质中获得飞秒超连续辐射

除了在空气中可以较好地获得较宽的超连续谱外，研究人员发现在透明液体介质中，飞秒激光成丝可以使用相对较小的激光脉冲能量

获得相对较宽的超连续光辐射。这是由于液体介质较气体具有相对大的非线性系数，因而在液体中成丝需要的临界激光功率密度较小。加拿大 Laval 大学的研究组在 2003 年针对水中飞秒激光成丝做了大量实验，所测得的不同入射功率下水的超连续谱如图 1.4 所示<sup>[37]</sup>，可以看出在 400~1000 nm 的波段范围内，采用水介质可以获得较宽的超连续辐射。该研究小组创建了水介质中飞秒激光脉冲非线性传播的理论模型，此模型是在慢变化近似条件下的波动方程与自由电子密度方程相耦合的基础上建立起来，同时指出产生超连续光谱的主要物理机制是多光子电离。

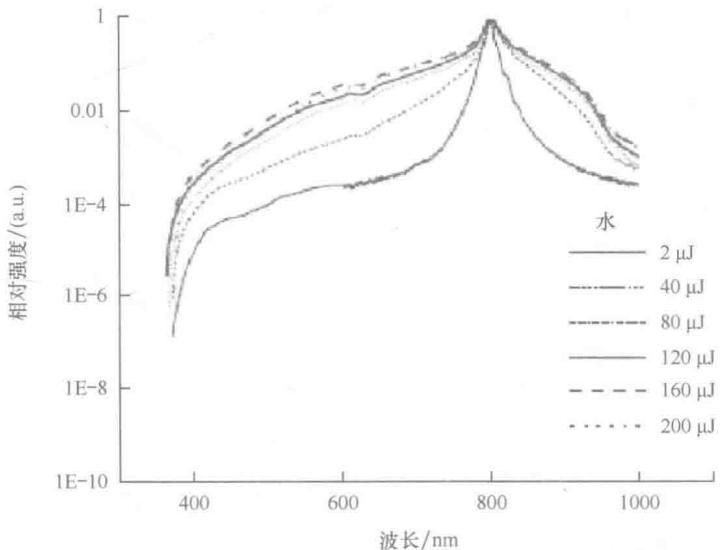


图 1.4 不同入射功率下水的超连续谱

2006 年，华东师范大学团队分别研究了飞秒激光脉冲在水、苯、甲醇和二硫化碳中传输时产生的超连续光辐射<sup>[38]</sup>，如图 1.5 所示，获得超连续光谱较宽的液体介质是水和甲醇，获得超连续光谱最窄的液体介质是二硫化碳。其中，飞秒激光脉冲在二硫化碳介质中成丝的光谱展宽最窄的原因：因为介质的带隙大小与光谱的最大峰值强度成正比，二硫化碳带隙相对较小，并且二硫化碳的非线性系数在四种样品

中是最大的，因此，增强了它的色散和受激拉曼散射，从而使得脉冲容易分裂，最后导致了较窄的超连续光谱。

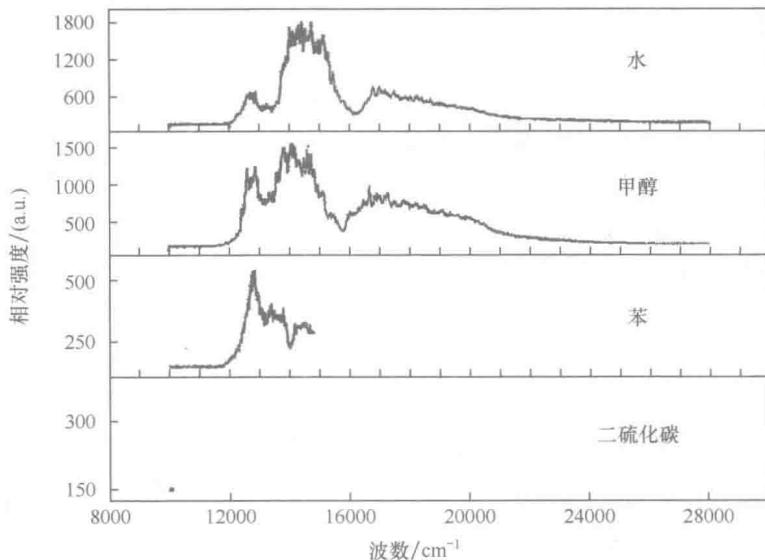


图 1.5 在水、甲醇、苯和二硫化碳中得到的光谱特性（激光脉冲能量为 25 mJ）

同年，F.Li 研究组使用酞菁钴氯仿溶液，在实验中观察到了飞秒激光等离子体丝及其超连续辐射<sup>[39]</sup>。实验中使用飞秒激光脉冲的脉宽为 50 fs、重复频率为 1 kHz。实验中通过调节激光脉冲的能量，使飞秒激光脉冲在 2 cm 长的比色皿中传输时成丝，同时在侧面的白屏上拍摄到了成丝的纵向图像（图 1.6），并在成丝的横截面方向得到了鲜艳的彩色圆环，如图 1.7 所示。

