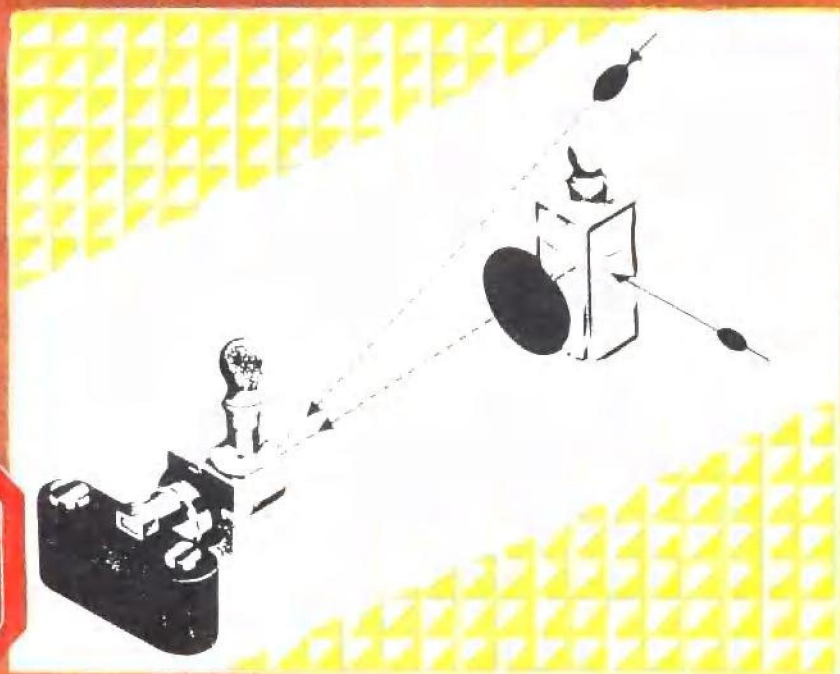


超短光脉冲

皮秒技术及应用

[美] S.L.夏皮罗 主编



科学出版社

超短光脉冲

梅光俊 校

科学出版社

1987

内 容 简 介

本书系《应用物理丛书》中的第18卷。书中论述了产生超短光脉冲的各种方法和实验装置，阐述了测量超短光脉冲的基本原理、测试方法和仪器设备，并用大量篇幅介绍了超短光脉冲在物理学、化学、生物学中的各种应用及取得的成果。

本书可供从事光谱学、非线性光学、快速化学反映、快速物理现象或与超短光脉冲技术有关的科学技术人员和高校上述专业高年级师生阅读。

S. L. Shapiro

ULTRASHORT LIGHT PULSES

Picosecond Techniques and Applications

Springer-Verlag, 1977

超 短 光 脉 冲

——皮秒技术及应用

〔美〕S. L. 夏皮罗 主编

朱世靖 陈佩峰 译
王清正 树 兰

梅克俊 校

责任编辑 刘海龄

科学出版社出版

北京朝阳门内大街137号

中国科学院印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行 各地新华书店经售

*

1987年8月第 一 版 开本：787×1092 1/32

1987年8月第一次印刷 印张：15 5/8

印数：0001—2,000 字数：355,000

统一书号：15031·833

本社书号：4902·15—4

定价：3.65 元

译 者 序

超短光脉冲是一个迅速发展的领域。高峰值功率的超短光脉冲作为基础科学与应用科学研究的一种强有力的工具,已经为近年来的发展所证明。在诸如相干光谱学、液体和固体(包括半导体)中的快速弛豫过程、非线性光学、快速化学反应动力学以及生物学中均已发现有广泛的应用并引出了许多前所未知的新结果。超短光脉冲在高速电子学、信息处理、等离子体的产生与诊断、精密测距、材料加工以及医学等实际领域中的可能应用,也日益受到重视。

本书的编者及撰稿人,如 Shapiro, Shank, Ippen, Bradley 等都是该领域内的著名学者,而且至今都还非常活跃,这就保证了本书论述的广度和深度。

本书是对超短光脉冲这一新领域的极好综述。它回顾了超短光脉冲技术产生和发展的历史,详尽地介绍了产生超短光脉冲的各种方法和装置,论述了测量超短光脉冲的基本原理、方法和仪器;然后用四章的篇幅全面介绍了超短光脉冲在物理、化学及生物学中的各种应用及取得的成果。因此,它无论对于了解超短光脉冲技术本身或者它的应用,都是一本很有价值的参考书。书中还列举了大量有价值的原始文献,可供进一步钻研参考。我们希望,本书中译本的出版对我国从事与超短光脉冲技术有关工作的研究人员、高等院校师生及工程技术人员有所裨益。

自本书原版问世以来,超短光脉冲领域又获得了很大的进展,目前已从皮秒领域发展到了飞秒领域。锁模技术不断改进,新的锁模方法,诸如对碰脉冲锁模、注入锁模、两种或多

种锁模技术的组合、超辐射锁模、相干 π 脉冲以及各种脉冲压缩技术均在迅速发展。Shank 等人 1982 年所发表的工作是这方面的一个极好的例子。他们将对碰锁模的环形染料激光振荡器-放大器系统所产生的 90 fs 的超短光脉冲, 通过 15 cm 的光纤产生自调相, 然后利用一对光栅进行线性调频补偿, 从而将脉冲压缩到 8 fs, 获得了迄今最短的光脉冲。按目前的发展趋势估计, 有人认为, 可望在 1990 年左右获得持续时间约 1—2 fs 的光脉冲。在这种脉冲中大约只包含一个完整的振荡周期(对可见光而言)。半导体激光器锁模的成功以及超短光脉冲(持续时间为 nps 至 < 1 ps) 的获得大概也是近年来最主要的进展之一。超短光脉冲的测量技术和仪器也有新的改进。但尽管有了这些发展, 本书所阐述的有关超短光脉冲的产生和测量的基本原理, 利用超短光脉冲研究快速动态过程的基本方法, 以及书中所展示的各个应用领域仍具有现实意义, 特别是对我国开展这方面的有关工作更是如此。

对近期的一些新发展有兴趣的读者可以参阅 G. H. C. New 的长篇评述文章。

本书的序言及第一、二、三、七章由朱世靖、树兰翻译, 第四、五章由陈倜嵘翻译, 第六章由王清正翻译, 名词索引由陈倜嵘翻译, 树兰校核、整理; 全书由梅克俊校阅。在翻译过程中发现原文中印错之处, 已均予改正, 书中不另加注释。译者限于水平, 难免有错误或疏漏之处, 敬希读者予以指正。

译 者

序 言

在激光发明以后不久，人们发现从某些激光器中可以获得大功率超短(皮秒)光脉冲，于是，一个崭新的探索领域就接着出现了。化学家、物理学家和工程师们很快就认识到，利用这种脉冲能够对极其快速的现象进行直接的瞬态研究。不过，须要研制完全新型的超快光学器件和电子器件。对于基础研究来说，皮秒脉冲技术的发展是十分重要的，因为实验工作者运用这项技术就能够直接测量液体和固体中原子和分子的运动，其方法是，用皮秒强脉冲来破坏物质的平衡，然后用皮秒技术来记录回复到平衡态的时间。

皮秒激光脉冲——其发生方法和诊断技术——的研究范围还在非常迅速地扩大；但是，在这个领域中工作的有经验的研究者对这项技术的状况所作的中肯评述，对新从事实验的人们很可能是及时的帮助。我们将介绍近十年来发展起来的一些先进手段，包括发射皮秒脉冲的锁模激光器、皮秒探测技术和皮秒器件。此外，我们还将概述对化学和物理学中快速现象进行研究的基本原理。这些原理是在进行了许多有趣的实验之后形成的，而且现在正用于生物学的研究之中。对皮秒领域的各不同方面的深入论述，必将对科学家和工程师同样有帮助。

由于本书应尽快地出版，以满足当前的需要，又由于论述皮秒脉冲的材料范围既广、卷数也多，本书不可能包罗无遗。各章之间有某些重复也是不可避免的，不过，从不同的角度对问题所作的阐述，对读者也许有所裨益。

编者谨在此向本书各撰稿人的合作致谢，向 M. A.

Puguay 和 H.Lotsch 博士提出的意见致谢,并向 F.Sko-
berne 在编辑上给予的协助致谢.

S. L. 夏皮罗

1976 年 11 月于新墨西哥洛斯阿拉莫斯

目 录

序言	ix
第一章 引言——历史概述	S. L. Shapiro 1
1.1 测量短暂时间间隔的历史概念	1
1.1.1 生理学方法	2
1.1.2 机械法和条纹概念	3
1.1.3 用火花照相法研究运动	5
1.1.4 上世纪的探测技术实验	7
1.1.5 火花照相法的推广——在化学上的应用	7
1.1.6 电学方法	8
1.1.7 历史综述	10
1.2 皮秒技术	10
1.2.1 皮秒技术的起源	10
1.2.2 新技术的优点和特点	13
1.3 目前的趋势和未来的研究方向	15
1.4 本书的编排	16
第二章 超短光脉冲的发生方法	D. J. Bradley 20
2.1 光脉冲的特性和测量方法	21
2.1.1 锁模激光脉冲的一般描述	22
2.1.2 脉冲强度轮廓 $I(t)$ 的测量	27
2.2 锁模激光器的类型	43
2.2.1 巨脉冲激光器	44
2.2.2 染料激光器	50
2.3 锁模激光器的起伏模型	73
2.3.1 巨脉冲激光器的被动锁模	73
2.3.2 被动锁模染料激光器	77
2.4 皮秒脉冲的放大	81

2.4.1	钨玻璃放大器	83
2.4.2	染料激光脉冲的放大	85
2.5	频率的改变	90
第三章 皮秒脉冲的测量技术		
	E. P. Ippen, C. V. Shank.....	96
3.1	脉冲宽度测量方法	96
3.1.1	相关函数	99
3.1.2	双光子荧光法	103
3.1.3	二次谐波振荡法	105
3.1.4	克尔光闸	108
3.1.5	脉冲压缩和动态光谱学	112
3.1.6	高阶非线性法	118
3.1.7	小结	120
3.2	皮秒事件的测量方法	121
3.2.1	泵浦法和光探针法	121
3.2.2	使用连续运转系统的时间分辨测量法	128
3.2.3	用于时间分辨发射研究的光选通技术	134
3.2.4	用于时间分辨发射研究的条纹照相机技术	140
3.2.5	结论	142
第四章 皮秒非线性光学		
	D. H. Auston.....	143
4.1	非线性光学效应	144
4.2	光谐波振荡和混频	145
4.2.1	二次谐波振荡	145
4.2.2	三次和高次谐波振荡和混频	151
4.3	参量发射	157
4.3.1	三光子参量荧光和放大	157
4.3.2	四光子参量相互作用	160
4.4	受激散射	165
4.4.1	瞬变受激喇曼散射	165
4.4.2	皮秒脉冲受激喇曼散射: 实验	168

4.4.3	皮秒脉冲受激喇曼散射：理论	174
4.4.4	其他光散射	183
4.5	自聚焦、自调相和自变陡	185
4.5.1	非线性折射率	186
4.5.2	皮秒脉冲的自聚焦：实验	193
4.5.3	皮秒脉冲自聚焦：理论	202
4.5.4	有限的细丝直径	205
4.5.5	自调相	206
4.5.6	皮秒脉冲的自变陡	211
4.6	光损伤	213
4.7	相干脉冲传播	218
4.7.1	克尔气体中的相干双折射回波	218
4.7.2	自感应透明	221
4.8	皮秒装置的应用	223
4.8.1	光整流	223
4.8.2	皮秒电子学	226
4.8.3	全息术	231
4.8.4	光通信	233
4.8.5	其他应用	235
第五章 液体和固体中的皮秒相互作用		
	D. von der Linde	237
5.1	基电子态的振动弛豫	238
5.1.1	利用喇曼效应激发和检测振动波	239
5.1.2	解相过程和振动能量的弛豫	241
5.1.3	相干与非相干喇曼散射	244
5.1.4	液体中解相时间的测量	248
5.1.5	非均匀展宽系统中的解相	254
5.1.6	晶体中光学声子寿命的测量	260
5.1.7	能量弛豫和能量转移	265
5.2	皮秒电子相互作用	275

5.2.1	多光子相互作用	275
5.2.2	光吸收的饱和	283
5.2.3	高密度电子-空穴等离子体	289
5.2.4	电子激发的非辐射弛豫	294
5.3	皮秒激子光谱学	301
5.3.1	激子性质概述	301
5.3.2	A_1 激子瓶颈效应	305
5.3.3	高密度下的激子发光光谱	308
5.3.4	高密度激子的动力学	312
5.3.5	激子分子的玻色凝聚	316
5.3.6	高密度激子实验的讨论	318
5.4	小结	321
第六章 化学中的皮秒弛豫过程···K. B. Eisenthal····		325
6.1	分子间能量转移	326
6.1.1	单态-单态转移	326
6.1.2	三重态-三重态转移	329
6.2	液体中分子的取向弛豫	333
6.2.1	光克尔效应	334
6.2.2	感生二向色性法	337
6.2.3	瞬变光栅法	341
6.3	光致离解和笼蔽效应	342
6.4	电子转移过程	346
6.4.1	电子的光致逸出和溶解	346
6.4.2	激发态电荷转移络合物	349
6.5	内部转换和系统间交叉的皮秒测量	352
6.5.1	内部转换和系统间交叉的吸收测量	353
6.5.2	内部转换和系统间交叉的发射测量	363
第七章 生物学中的皮秒弛豫测量		
····· A. J. Campillo, S. L. Shapiro····		372
7.1	光合作用	373

7.1.1	光合作用中的初级过程	373
7.1.2	色素	376
7.1.3	激子迁移	388
7.1.4	反应中心的氧化	408
7.2	血红蛋白测量	420
7.2.1	血红蛋白的性质	420
7.2.2	血红蛋白的光学性质	421
7.2.3	HbCO 和 HbO ₂ 的光致离解性质	423
7.2.4	血红蛋白化合物的皮秒和亚皮秒测量	424
7.3	视觉分子	426
7.4	脱氧核糖核酸 (DNA)	434
7.4.1	脱氧核糖核酸在应用上的可能性	434
7.4.2	向嵌入染料分子的转移	439
7.4.3	皮秒研究	440
7.4.4	皮秒脉冲和 DNA 中的选择性生物化学反应	443
参考文献		445
补充参考文献		471
名词索引		474

第一章 引言——历史概述

S. L. Shapiro

皮秒技术的迅速发展使我们能够研究物质中的基本过程,下面各章将评述这方面的发展情况。本章,我们先来了解以测量快速现象为基础的某些历史概念。我们将看到,有些概念是非常古老的,许多概念都包含在现代技术中,不过,是以最完善的形式出现的。我们还力图揭示:为什么研究者们在过去对快速现象一直感兴趣;他们的某些动机和方法为何与今天的不同。我们还将力图回答这样几个问题:为什么皮秒光脉冲在这样短的时间内变得如此地惹人注目?主要的研究方向是哪些?前途如何?虽然我们对这个领域仅作扼要的叙述,但我们却希望,在综述中能成功地勾画出研究对象和皮秒的研究前景。其中的新概念将在以后的各章中详细讨论。

1.1 测量短暂时间间隔的历史概念

为了准确地测定短暂持续时间间隔,人们首先一定要能够测量时间。一种测量方法是辨别有规律地一次又一次重复发生的现象,例如一天的逝去。古人还懂得如何用日晷这类装置来细分时间。为了测量更短的时间间隔,古人使用了水漏,就是使一定数量的水从水槽中滴漏。可是,他们显然对于用这类方法来研究物理现象不感兴趣。

1.1.1 生理学方法

对短暂时间间隔进行认真研究，确实应算作是从伽利略开始的^[1.1]。伽利略是以他的运动理论而著名的，许多人认为，他的实验方法是现代物理学的开端。伽利略之所以能有许多发现，关键在于他有办法测量短暂的时间间隔。对这个事实，人们可能并没有广泛地认识到。在伽利略的最早的测时方法中，他利用自己的脉搏来作为时钟。这个方法无疑反映了对生理功能的本性感觉，因为这些生理功能显现出永远朝一个方向连续而均匀地进行。他相信，他的方法准确到每次脉搏跳动的十分之一左右（见参考文献[1.1]b 第 171 页）。

伽利略大约在 1580 年还发现了悬摆的等时性。可惜的是，没有留下他早期实验的记录。有一个著名的故事，讲述他怎样用他的脉搏来测量比萨大教堂中吊在天花板上的吊灯来回摆动的时间。虽然现在大家认为这个故事真伪难辨，但伽利略发现了等时性，却是无疑的。后来他设计了一个用摆锤的时钟，还设计了一种医疗器械帮助医生来诊断病人的脉搏率是否正常。摆锤如果偏离平衡位置很小，它实质上就是一个谐振子，其中重力起着弹簧常数作用。谐振性就是隐藏在摆动的等时性背后的现象，就是隐藏在象表的摆轮这类钟表机械、电振荡和负载音叉背后的现象。伽利略（见参考文献[1.1]b 第 172 页）还把一个大水槽放在高处用以测量时间。在槽底焊一根小管，在需要测量的时间间隔内让细流从小管下射。水收集在一个玻璃杯中，然后用精确的天平称量。由于伽利略的时钟不准确，他巧妙地把时间的测量变成了重量的测量。

虽然生理功能在伽利略的有独创性的测量方法中起了关键的作用，但不久人们认识到，生理检测装置用于测量更短暂的时间间隔就受到了限制。Von Segner^[1.2] 在 1740 年做

了一个实验。这个实验表明，影象在视网膜上的停留时间大约是 150 ms。他把一块烧红的木炭放在一个旋转的圆盘边上，发现当圆盘旋转加快时，视网膜上的表观影象很象一个弯曲的彗星。通过记录看到的彗星尾巴的长度与轮速的函数关系，Von Segner 确定了用眼睛测量短暂时间间隔的限度。

为了测量短于十分之一秒的重复现象，研究家们起初还求助于第三种生理功能——声音。我们都知道，声音是在空气中传播的压缩波，人们之所以能察觉它，是因为它驱使内耳小骨振荡。人的听觉范围大致在 24 到 24000 cps 之间。这就提示我们，如果能把持续时间在 10^{-2} s 和 10^{-4} s 之间的周期现象转换为声波，就有可能探测这种现象，因为人能够鉴别不同的声音频率。同样，利用听觉还能把声音与某种标准，例如与一把音叉、一根拨动的弦或类似的仪器相对比。以声学原理为依据的一个出色的时间标准是 de la Tour^[1.3] 于 1819 年设计的多孔发声器。其组成部分是一个沿周边钻有一系列等距孔的圆盘和一个用管子连接到一个压缩容器上的汽嘴。圆盘以恒速旋转，盘上的孔不停地横扫过汽嘴。如果汽嘴的开闭充分迅速，就会发出一种音调，其频率可以与圆盘旋转速度联系起来。正如我们马上就可以在下一节中的一个实验实例中看到的一样，多孔发生器很快被用来当作测量短暂时间间隔的仪器。频率常常是一个藉以测量时间的间接手段。

1.1.2 机械法和条纹概念

1834 年 Wheatstone^[1.4,5]——他非常了解由视觉响应的有限时间产生的限制——指出，如果给予发光体一个快速的横向运动并从而和发光体的原有速度合成，那么，这个发光体的路径可以延长到任何可指定的限度，而它的速度和

持续时间就可以测定。Wheatstone 更为简便地应用了一个旋转镜来测定火花的持续时间和电的速度。如图 1.1 所示，他观察由一个飞速旋转的平面镜反射的火花的影象，平面镜由一连串旋轮带动旋转。条纹记录法的实质归纳如下：在稍晚的时刻发射出的光，将在不同的空间位置上探测到，在图示的情况下，这是因为旋转镜的机械运动使得光的角方向随时间发生了变化。Wheatstone^[1,4,5] 使用这个机械方法证明，某些火花的持续时间比 10^{-6}s 还短。为了测定镜子的旋转速度，他运用了两种声学方法——多孔发生器和卡片敲击臂。他求出镜子每秒钟的旋转次数为 800。

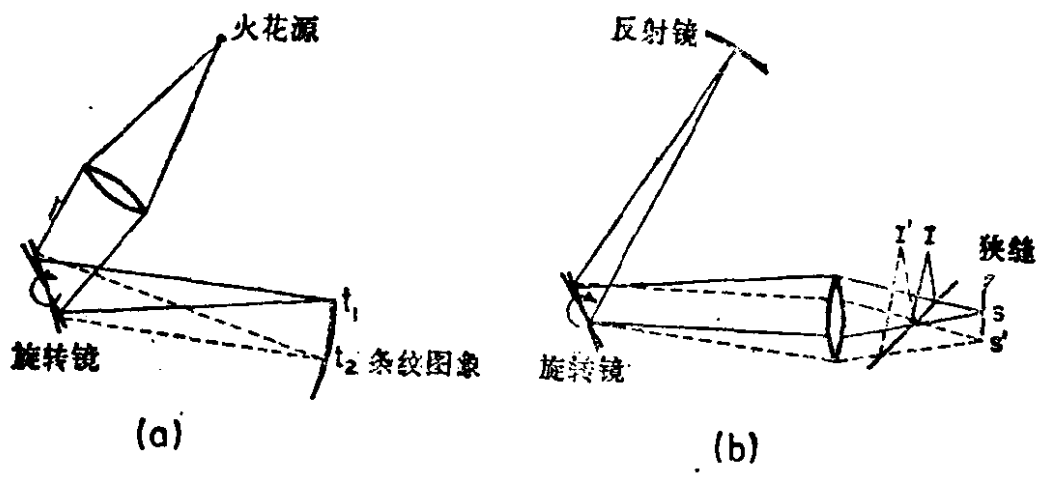


图 1.1 a 和 b (a) Wheatstone 1834 年用机械条纹照相机显示的火花随时间的变化情况。旋转镜使稍后时刻发射的光偏移至另一个空间位置，知道了象的长度並知道了反射镜的角速度，就可以测出火花的寿命。(b) Foucault 的光速测量装置。在 S 位置发射的光由一个旋转镜反射到固定镜，再反射回来，在 I' 就能清晰地探测到。由于光具有有限的传播速度，S 的象 S' 与 S 之间有一位移

另一种考虑在这里也得到了实现：那就是为了直接测定短瞬的现象，必须提供一种源，其持续时间应与现象本身的持续时间不相上下。Wheatstone 所研究的超短现象是电火花。和火花源一样，受控的电方法在当时还是非常新颖的。Wheatstone^[1,4,5] 还用他的仪器证明，某些火焰是快速振

动的,这个事实人们曾从火焰发出的声音而猜测到。Wheatstone 的仪器被应用于研究物质的荧光现象和磷光现象,大约是在他的发现之后一个世纪。要指出的是,如果将图 1.1 中的火花聚焦,以便在火花源原先占据的准确位置激发一个样品,那么,就可以利用这个火花来研究快速现象。在 Wheatstone 式装置于 1920 年获得这方面的应用之前, Becquerel^[1.6-8] 也研究和测量了磷光的寿命。他使用了一个机械斩光盘来产生短暂光源并使用了一个机械快门,从而得以测量毫秒范围内的磷光现象。

条纹法也被 Foucault^[1.9-11] 应用于他的 1850 年和 1862 年的著名实验中。他的实验以极高的精度测出了光的速度。这些实验如图 1.1 所示。实验使用了太阳光源。日光穿过一个狭缝,经一个平面镜反射而在一个曲面镜上成象。为清晰起见,从点 I 观察返回的反射光,由于光在旋转镜和曲面镜之间来回行进之际镜子的旋转,反射光将改变其位置并伸长。知道镜子的角速度和两镜之间的距离(在 Foucault 原型实验中大约是 20m),就能很容易地算出光的速度。Foucault 得出的光速是 $2.980 \times 10^{10} \text{ cm/s}$ 。这个数值与当今最精确的测量数据相差大约一百六十分之一。Foucault 用类似的方法还证明,光在折射率大于 1 的其它各种介质中传播较慢。这个事实当时被用来区分光的微粒说和光的波动说。

1.1.3 用火花照相法研究运动

最终发展成为今日的探查和闪光光解实验的许多概念,很久以前就以某些方式建立起来了。我们已经看到,微秒火花在 1834 年便可获得。实际上,到了 1851 年, Talbot 的成就着重表明了这样一点,那就是用高速火花拍摄运动中的物体的象是一个很老的概念。不过,在当时他的成就被静物