

综述

飞秒激光脉冲整形技术及其应用*

姚云华¹⁾ 卢晨晖¹⁾ 徐淑武¹⁾²⁾ 丁晶新¹⁾
贾天卿¹⁾ 张诗按^{1)†} 孙真荣¹⁾

1)(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)

2)(南通大学理学院, 南通 226007)

(2014年4月22日收到; 2014年5月26日收到修改稿)

通过频域上控制飞秒激光脉冲幅度、相位和偏振在时域上可以获得几乎任意形状的飞秒激光脉冲, 这种飞秒激光脉冲整形技术可为研究光与原子分子非线性相互作用提供一种全新实验技术手段. 本文介绍飞秒激光脉冲整形发展历史、技术方法、控制方式及其相关应用, 并展望飞秒激光脉冲整形技术未来的发展方向.

关键词: 飞秒激光, 脉冲整形, 相干控制, 优化控制

PACS: 42.50.-p, 33.80.-b, 32.80.-t, 42.65.Dr

DOI: 10.7498/aps.63.184201

1 引言

飞秒激光器的出现给激光光学的发展注入了新的活力, 并带动了相关研究领域的发展. 由于飞秒激光具有极短脉冲宽度、极高脉冲强度、极宽光谱带宽等特点, 因而在一些相关研究领域和方向表现出非常优越的性能, 从而得到广泛应用. 随着飞秒激光的广泛应用, 一系列基于飞秒激光的技术也随之发展起来, 飞秒激光脉冲整形技术就是其中一项十分重要的技术. 飞秒激光脉冲整形基本原理就是通过对飞秒激光脉冲幅度、相位以及偏振方向的控制来产生所需的几乎任意光波脉冲形状的技术, 目前已经被广泛应用于分子动力学、非线性光谱学、飞秒化学、高速光通信、生物医学成像以及量子运算等诸多领域^[1-4].

2 发展历史

从1960年世界上第一台激光器诞生以来, 获得皮秒和飞秒时间尺度的激光就一直是科学家努力的方向. 1981年美国贝尔实验室 Fork 等^[5,6]在

环形染料激光器中运用碰撞脉冲锁模技术首次获得 90 fs 的激光脉冲, 超短激光脉冲从此进入了飞秒阶段.

超快激光脉冲尚未跨入飞秒阶段之前, 就已经有了脉冲整形的概念. 1969年, Treacy 等利用光栅对的色散作用实现了对啁啾脉冲的压缩和放大, 这是人们对脉冲整形的早期尝试; 1984年, Fork 等^[6]使用棱镜对完成了色散补偿实验; 1994年, Kashyap 等^[7]提出利用啁啾反射光栅对光纤传输脉冲进行色散补偿. 目前, 在脉冲整形中使用最为广泛是基于傅里叶光学原理的脉冲整形技术. 1873年 Abbe 等就提出了相干成像的理论, 1906年 Porter 等进行了相应的实验, 这次实验验证了 Abbe 的显微镜成像理论, 也奠定了傅里叶光学的基础. 傅里叶光学能方便地实现对光频谱的调控, 这正是脉冲整形所需的, 正是傅里叶光学与飞秒激光的结合推动了飞秒激光脉冲整形技术的迅速发展.

在飞秒激光脉冲整形技术尚未发展之前, 核磁共振方面的研究人员就已经开始进行射频波段脉冲整形的尝试. 射频波段脉冲长度在毫秒量级, 研

* 国家自然科学基金(批准号: 11004060, 51132004)和上海市青年科技启明星计划(批准号: 12QA1400900)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: sazhang@phy.ecnu.edu.cn

究人员利用微波电路对其进行整形. 这种脉冲整形采用的是线性时不变滤波方法, 这种方法是基于电子工程学里的一种概念, 线性滤波能处理从低频(声波或更低频段)到高频(微波频段)之间的大范围的信号. 这种技术在核磁共振中得到了广泛的应用, 人们就自然地想到将这一技术推广到光频段, 但是对飞秒激光脉冲进行可调线性滤波所需的硬件与常规信号线性滤波所需的电阻电容电感差异非常大. 从概念上来说, 线性滤波既能在时域进行也能在频域进行.

在时域中, 滤波器可以用时间响应函数 $g(t)$ 来描述. 滤波器输出脉冲 $E_{out}(t)$ 可以用输入脉冲 $E_{in}(t)$ 和时间响应函数 $g(t)$ 的卷积来表示. 如果是狄拉克函数的脉冲, 那么输出信号就是 $g(t)$. 对于脉冲时间足够短的脉冲, 产生特定脉冲形状输出的问题就等效于制作出具有特定时间响应的滤波器, 但是由于没有能在皮秒或低于皮秒的时间尺度工作的电子器件, 到目前为止在这个时间量级的时域超快脉冲整形还无法实现. 目前的调制器最高只能工作在 60 GHz 的范围, 这比飞秒脉冲整形所需的频率低得太多, 为此人们采用间接的方式实现脉冲整形.

为解决时域脉冲整形中无法对超快脉冲进行整形的问题, 人们提出了在频域上进行间接脉冲整形的方法. 在频域中, 滤波器由其频率响应 $G(\omega)$ 来表示, 线性滤波器的输出信号 $E_{out}(\omega)$ 是输入信号 $E_{in}(\omega)$ 和频率响应 $G(\omega)$ 的乘积. 这样, $E_{in}(t)$, $E_{out}(t)$, $g(t)$ 与 $E_{in}(\omega)$, $E_{out}(\omega)$, $G(\omega)$ 构成傅里叶变换关系:

$$G(\omega) = \int g(t) e^{-i\omega t} dt, \quad (1)$$

$$g(t) = (1/2\pi) \int G(\omega) e^{i\omega t} dt. \quad (2)$$

1983年, Froehly等^[8]首次提出了4F结构的脉冲整形器, 并进行了30 ps脉冲激光的整形控制实验. 1987年, Weiner和Heritage^[9]沿用这种设计, 并采用固定的位相板对100 fs的激光脉冲进行了一系列的实验, 随后1992年又改用128像素的液晶空间光调制器开展了很多脉冲整形实验^[10,11]. 此外, 他们还在原4F结构的基础上提出改进方案, 将光路中的透镜更换为凹面镜以减少透镜引入的色差, 并成功实现了输入脉宽在10—20 fs的激光脉冲的整形. Weiner等的大量工作使飞秒激光脉冲整形技术不断走向成熟. 1992年, Judson和Rabitz^[12]提出了利用自适应反馈控制实现最优化的飞秒脉

冲整形的想法, 并在理论上进行了分析, 随后开展了一系列的实验, 验证了自适应反馈控制脉冲整形的可行性. 自适应反馈控制脉冲整形方法的提出使飞秒激光脉冲整形技术走向了一个新的高度, 极大地拓宽了飞秒脉冲整形的应用范围.

3 飞秒激光脉冲整形的技术方法

目前, 飞秒激光脉冲整形技术的主要实现方法是利用4F系统通过傅里叶变换对激光脉冲实现整形, 如图1所示. 4F系统由一对相同的光栅、一对相同的柱透镜以及放置在中间位置的位相板组成, 由于各相邻元件之间的距离都为透镜的焦距 F , 所以称之为4F系统(其中柱透镜也可以用凹面镜代替).

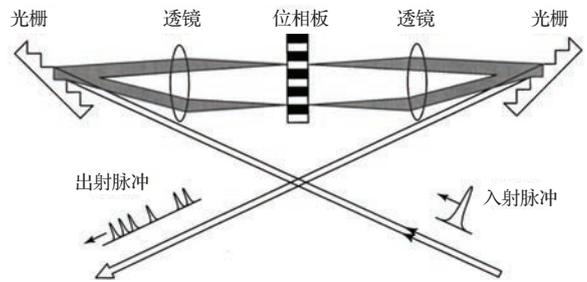


图1 用于脉冲整形的4F系统示意图^[1]

4F系统的工作原理: 入射的飞秒激光脉冲首先以一定角度照射到第一个光栅上, 在横向上产生色散, 不同的频率成分的激光以不同的衍射角度入射到柱透镜上. 由于光栅中心到柱透镜中心的距离为 F , 发散的激光经过柱透镜后平行出射. 这样入射激光经过第一块光栅和透镜后, 实现了时域到频域的傅里叶变换, 并且不同频率成分的光在空间上依次分布. 而位于焦平面的位相板就能够对横向分布的不同频率成分的光进行独立的调制, 可以调控的量包括相位、振幅以及偏振. 通过位相板后, 激光入射到第二块透镜, 聚焦到第二块光栅上, 经光栅压缩后射出, 实现了频域到时域的转变. 对飞秒激光脉冲的整形是通过位相板的调制来实现的. 如果位相板不对脉冲进行调制, 出射的飞秒脉冲与入射的完全相同, 因此这套系统也被称为零色散的4F脉冲整形装置.

位相板主要是对横向分布的飞秒激光各频谱成分进行独立调制, 由于不同频谱成分在空间上的分布比较紧密, 对位相板的分辨率就有较高的要求. 早期的脉冲整形装置中位相板的制作采用显微

光刻图形技术以获得足够高的分辨率. 针对不同的脉冲整形需求, 需要制作不同的位相板, 成本较高并且效率偏低. 在人们的不断研究过程中, 可编程调制器的概念被提出并成功得以实现. 通过对可编程调制器的控制可以实现不同的脉冲整形模式并能在不同模式间方便地切换, 这一显著的优势使得可编程调制器在被制作出后不久便得到广泛的应用. 可编程调制器的种类很多, 以下介绍几种被广泛使用的调制器.

3.1 液晶空间光调制器

图 2 展示了液晶空间光调制器的基本结构, 它能够独立地控制相位或者振幅. 这个基本的结构包括两块玻璃基板以及灌注在其中的向列相液晶材料. 向列相液晶一般是由细长的棒状分子组成, 它们指向有序, 但位置无序, 所以能像液体一样流动, 另外液晶分子的指向会随着受到的电场而改变.

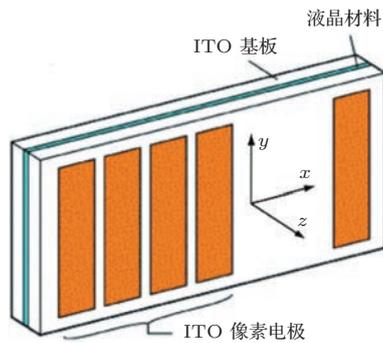


图 2 液晶空间光调制器的基本结构 [4]

如图 3(a) 所示, 液晶盒的玻璃基板内侧经过摩擦取向处理, 使得在未施加电场时, 液晶分子的长轴指向都沿着 y 方向, 此时液晶盒就具有了双折射效应, 偏振方向沿着 y 方向 (平行于分子长轴方向) 的偏振光折射率最大, 而沿着 x 方向 (垂直与分子长轴方向) 的偏振光折射率最小. 在图 3(b) 中, 当液晶盒的基板间施加电压, 也就是对液晶施加 z

方向的电场时, 液晶分子会沿着 z 方向倾斜, 偏振方向沿着 y 轴的偏振光折射率降低, 液晶盒的双折射效应减弱. 正是基于液晶的这种性质, 可以通过对液晶盒上电场的控制从而改变 y 方向偏振光的相位.

为了施加所需的电场, 两块玻璃基板内侧都附着一层透明导电薄膜, 比如氧化铟锡材料 (ITO), 其中一块基板上导电薄膜被制作成很多分离电极的形式与外部电路相连, 另一块基板上的导电薄膜不做成分离电极的形式能够整体导电. 一个典型的液晶调制器件一般包含 128 到 640 个像素, 其中相邻像素中心的间距在 $100\ \mu\text{m}$ 的数量级, 而相邻像素的边界距离只有几微米. 图 3(c) 显示了偏振方向沿 y 轴的偏振光的相位随施加电场电压的变化. 当施加电压低于阈值电压时液晶分子不发生倾斜, 相位不发生改变. 当施加电压大于阈值电压以后, 分子在电场作用下迅速倾斜, 偏振方向沿 y 轴的偏振光折射率迅速降低, 相位差随之迅速增大. 当施加电压增大到一定程度达到饱和时, 液晶分子与电场方向几乎平行, 相位差趋于平缓不再增加, 相位差的最大值对应于双折射的最小值. 为了实现对相位的完全控制, 调制器的最大相位差至少要达到 2π . 最大相位差与液晶层的厚度成正比, 所以要实现相位的完全控制, 液晶层要有足够的厚度. 相位与电压之间的对应关系校准处理后做成对照表, 以便后续使用. 一种常用的校准方法是将偏振光以 45° 的角度入射 (与 x 轴 y 轴都夹 45° 角), 这样电压控制的双折射就决定了输出光的偏振状态. 透过正交偏振片的功率由下式决定:

$$\frac{P_{\text{out}}}{P_{\text{in}}} = \sin^2 \left[\frac{\Delta\phi(V)}{2} \right], \quad (3)$$

其中 $\Delta\phi(V)$ 表示和电压相关的双折射率, 所以 $\Delta\phi(V)$ 可以通过功率透过率与施加电压的关系计算出来.

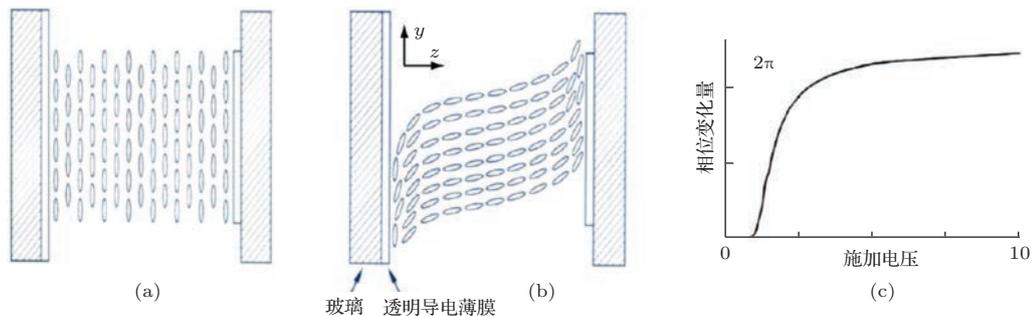


图 3 空间光调制器液晶层调制原理图 [4] (a) 没有外加电场; (b) 加入轴向电场; (c) 相位随电压变化曲线

通常人们使用电脑结合多通道电路对调制器施加特定的驱动信号, 这样能实现对各个单元独立的灰度控制. 值得一提的是驱动信号一般由不同振幅的频率在几百赫兹或者更高频率的方波组成, 而不是直流电压, 之所以采用交流驱动信号是为了防止液晶的电致迁移效应^[13], 增加液晶材料的使用寿命. 另外, 液晶分子的旋转只依赖于施加电压的振幅, 所以用方波代替直流电压不会改变调制器的工作情况. 驱动电路在设计合适的情况下能够保证液晶空间光调制器提供的相位函数基本不变, 所以在使用类似锁模激光器这样的高重复率光源时, 调制器能够对脉冲进行连续的整形, 从而获得比较理想的结果.

采用液晶空间光调制器的脉冲整形装置的整形速度取决于调制器的响应时间, 由于液晶本身的动力学特性被限制在毫秒量级, 还会进一步受到控制电路等因素限制.

单层空间光调制器主要用于脉冲的相位整形^[14,15], 也可以在不考虑相位改变的情况下用于振幅整形. 早期的一些实验就利用单层空间光调制器实现了 45° 夹角的入射偏振光的振幅整形. 为了实现对振幅相位进行独立的控制, 人们设计出包含两个液晶盒的空间光调制器^[16], 两个液晶盒背对背地装配在一起, 它们的液晶分子长轴指向与 x 轴的夹角分别为 45° 和 -45°, 在一个液晶盒的一个像素上施加电压时, 在这个像素处的液晶分子朝着 z 轴旋转实现了平行于液晶方向光分量的相位调制. 当入射偏振片和出射偏振片偏振方向都与 y 轴平行时, 特定像素处的输出光有以下形式^[16]:

$$E_{\text{out}} = E_{\text{in}} \exp \left[\frac{\Delta\varphi_1(V_1) + \Delta\varphi_2(V_2)}{2} \right] \times \cos \left[\frac{\Delta\varphi_1(V_1) - \Delta\varphi_2(V_2)}{2} \right], \quad (4)$$

其中 $\Delta\varphi_1(V_1)$ 和 $\Delta\varphi_2(V_2)$ 分别是第一个和第二个液晶盒在电压作用下的双折射. 透过功率依赖于两个液晶盒双折射之差, 而附加相位依赖于两个液晶盒双折射的平均值. 这样, 就可以通过改变 V_1 和 V_2 对相位和振幅进行独立的控制.

双层液晶空间光调制器也可以被用于脉冲偏振整形^[17]. 在脉冲偏振整形的情况下, 要去除空间光调制器的后置偏振片, 这样的结构使得调制器能对两个正交的偏振分量进行独立的相位控制. 正交的偏振分量在同一个空间光调制器的不同位置进行调制, 对各个路径上的延迟进行细微平衡调节,

就能实现对不同频率成分偏振状态的调制^[17-19]. 此外, 还有一种方法是利用四个或更多的液晶层来实现对振幅、相位和偏振的完全整形^[20,21].

3.2 硅基液晶调制器

由于通信连接的问题, 液晶空间光调制器在光学有效区域像素数量受到限制, 最多只能做到几百个像素. 为了在脉冲整形中获得更加精细的波前控制, 就需要提高像素密度, 硅基液晶技术 (LCoS) 的出现解决了像素密度的问题^[22-24].

硅基液晶最初是用于微型显示技术, 硅基液晶空间光调制器是一种反射器件, 如图 4 所示. 硅芯片上制作有像素化的电极阵列用来施加驱动信号, 硅芯片上首先放置一个反射镜, 之后是一个液晶层和一块带有 ITO 的玻璃基板, 由于像素电极是直接驱动在驱动电路上制造的, 硅基液晶调制器能得到很大的像素数目, 这就是硅基液晶调制器的主要优点. 一维的硅基液晶调制器可以有几万个像素, 而二维阵列可以有几百万个像素.

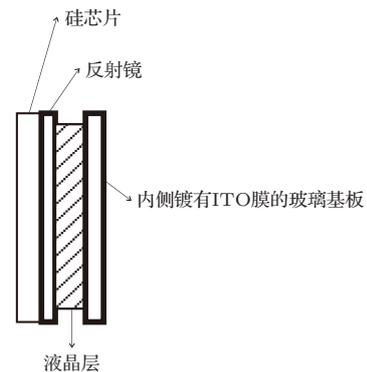


图4 硅基液晶空间光调制器结构图

与传统的液晶空间光调制器相比, 硅基液晶调制器除了像素数目增加了很多外, 像素的尺寸也小了很多. 一个设计合理的脉冲整形器应该做到像素尺寸与傅里叶平面每个频率的光斑尺寸相接近, 而一维和二维硅基液晶像素的尺寸大小可以分别达到 1.6 μm 和 8 μm ^[25,26], 每个频率成分的光斑尺寸都要比一个像素尺寸大得多, 也就是说有一组像素组成一个“超像素”控制单个频率成分. 值得一提的是, 由于电场边界的扩展效应, 即使像素尺寸很小, 空间光调制器的分辨率也不会有明显的提高.

由于 LCoS 只有一个液晶层, 所以要实现同时对相位振幅进行独立控制就要采用新的方法. 通过对超像素上不同的像素施加不同的驱动信号来形成衍射模式, 图 5 中给出了 3 个超像素上施加的相

位调制信号. 相位与位置的关系设置成正弦光栅的形式:

$$M(x) = \exp \left[i\Delta \sin \left(\frac{2\pi x}{\Lambda} \right) + i\Phi(x) \right]. \quad (5)$$

当光栅周期 Λ 与傅里叶平面上单频光斑尺寸 ω 相比足够小时, 入射光就会以不同的振幅衍射到分离的衍射级上, 而振幅的大小是由光栅的相位偏移 2Δ 决定的, 这种方法能将功率从反射的零级光束中耦合出来, 这样来控制它的振幅. 另外反射的零级光束的相位是由施加的平均相位 $\Phi(x)$ 控制, 通过这种方法就实现了相位和振幅的独立控制^[25]. 对反射式硅基液晶空间光调制器进行脉冲整形的实验测试发现, 零级衍射具有最低的介入损耗, 而一级衍射具有最高的消光比.

采用二维调相硅基液晶空间光调制器的脉冲整形可以用来实现商用的波长选择开关, 应用于光通信网络中^[27]. 空间光调制器在垂直于光谱色散方向上以不同的角度将入射光反射出去, 通过程序控制将出射光耦合到不同的输出光纤里, 这样在脉冲整形过程中不同的波长成分可以被独立地关断或者任意地衰减.

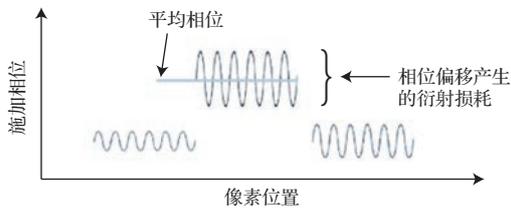


图5 一维硅基液晶调制器中施加相位与位置的关系^[4]

3.3 声光空间光调制器

除了液晶空间光调制器之外, 声光空间光调制器也是一种应用较多的调制器, 如图6所示. 声光调制器是由 Warren 等发明的^[28-31]. 声光调制器的调制是基于声波传播导致介质折射率变化来实现的, 首先利用射频电信号驱动压电转换器, 产生声波在适当的介质里传播, 声波在介质中传播使得介质的折射率周期性变换, 形成了一个折射率光栅. 经过声光介质衍射后的光束频率会转换到与射频驱动信号相等(一般为几百 MHz), 理想情况下衍射后的光束振幅和相位也与射频驱动信号相等. 采用声光调制器的装置与采用液晶空间光调制器的装置类似, 但在角度上要考虑声光介质的衍射角. 经过介质的声波信号是经过拓展和延时的时间驱动信号, 因此采用任意波形发生器(目前在几百 MHz

范围技术已经比较成熟)来驱动声光调制器, 控制产生声波的轮廓, 进而实现了可编程调制脉冲整形(尽管还需要考虑声波的衰减和非线性效应).

由于脉冲整形是通过一束声波的衍射产生, 这种声光位相板就会带有行波的特点. 总的来说, 声光调制器不适合对一般锁模激光器输出的高重复率脉冲进行脉冲整形, 因为声光调制的原理决定了声光调制脉冲整形是随时间变化的, 不过有些特殊情况下, 可以将随时间的变化巧妙地消除^[32]. 然而, 声光调制器对于飞秒激光脉冲整形是可以采用的, 声光调制器的再编程时间是由声波在声光介质的传播时间决定的(大约几十毫秒), 对于脉冲间重复率在 kHz 量级的激光系统来说有足够的时间对脉冲整形器的整形模式进行刷新或更改.

值得一提的是, 声光空间调制器提供了一个空间连续的位相板, 而液晶空间光调制器提供的是像素不可连续的位相板, 人们已经证实声光调制器的时间带宽积大约是液晶空间光调制器几百倍. 声光调制器的另一个优点是脉冲整形的波长范围大, 人们已经证实声光调制能够调制从 260 nm^[33] 到 5 μm ^[34], 也就是从超紫外到中红外的范围内的光波, 而由于液晶材料性质的影响, 液晶空间光调制器的工作范围只能在可见光和近红外波段.

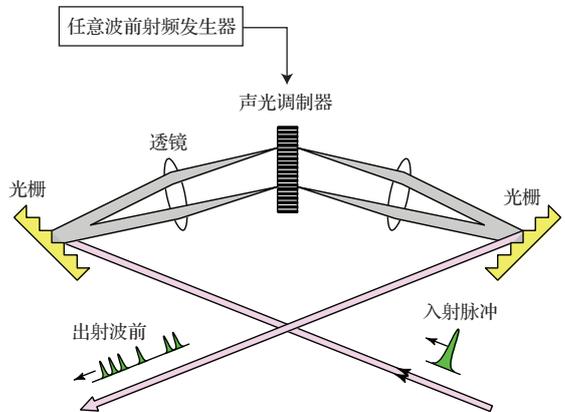


图6 采用声光调制器的4F光路^[4]

3.4 其他调制器

除了以上介绍的这三种调制器外, 还有一些调制器也可以用于脉冲整形, 比如移动镜和变形镜, 如图7和图8所示. 对于一些简单的光谱纯相位调制来说, 采用特殊的反射结构元件就能实现, 移动镜和反射镜就是通过改变反射镜的状态获得理想的相位调制. 移动镜是通过改变反射镜的偏转角度来改变相位, 例如 Heritage 等利用移动镜扫描调制

的方式在 100 ps 的时间窗口实现了对 60 fs 脉冲的扫描, 获得了傅里叶转换脉冲整形方法中最高复杂度 [35,36], 而变形镜是通过在反射镜不同位置施加大小方向不同的力使其发生扭曲或者控制微反射镜阵列来实现对相位的调制 [37-42].

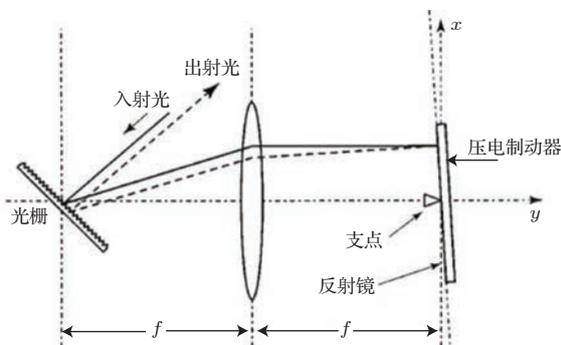


图7 移动镜调制器结构 [35]

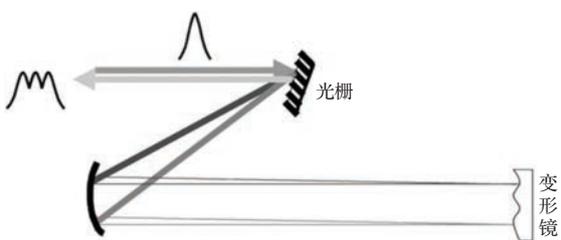


图8 变形镜调制器的结构 [3]

4 飞秒激光脉冲整形技术的控制方式

在飞秒激光脉冲整形技术的应用过程中, 也会涉及到控制方式的问题, 和其他控制技术一样, 脉冲整形控制方式分为开环控制和闭环控制。

开环脉冲整形是指在入射激光脉冲的基础上, 根据所要达到的目标脉冲, 设计相应的位相板, 或者在可编程空间光调制器上施加相应的信号, 从而得到整形的激光脉冲输出, 比如在脉冲整形技术发展初期, 就是根据需要制作相应的固定位相板进行脉冲整形。

在实际的实验中, 对实验体系的能级结构难以完全了解, 并且多原子分子的最优控制函数精确计算十分复杂, 即使能够计算出最优控制的函数, 由于仪器噪声以及其他限制因素, 施加在体系上的激光脉冲也已经不是最优整形的脉冲。由于这些因素的存在, 在具体的实验过程中开环控制脉冲整形方法难以获得最优的整形脉冲。为了解决这个问题, Judson 和 Rabitz [12] 提出了闭环控制脉冲整形方法。闭环控制脉冲整形也被称为自适应反馈控制脉冲整形或者自学习脉冲整形, 在这种方法中可编

程空间光调制器可以通过改变驱动信号改变其调制模式, 并能够在不同模式间快速切换。可编程空间光调制器的使用, 避免了固定位相板制作复杂、成本高、效率低的问题, 更大的意义在于它使得脉冲整形闭环控制得以实现。

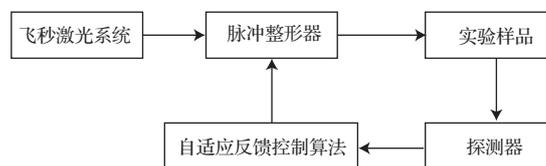


图9 自适应反馈控制脉冲整形原理图

自适应反馈控制脉冲整形方法构造了一个闭环反馈回路, 通过量子体系的测量结果来评估整形控制的完成度, 再对其进行优化, 直到控制结果达到最优状态, 如图 9 所示。在每次循环过程中, 都会有调整后的整形脉冲与体系相互作用, 将探测的目标信号 (比如特定反应产物的产率或者目标能级的粒子数布局) 反馈到自适应算法中, 自适应算法将测量的信号与预设的控制目标进行比较评估, 朝着最优结果做出可行的优化控制。自适应反馈控制脉冲整形方法不仅能够在电脑上进行模拟 [43-55], 它更大的优势在于能够直接在实验室中使用。

具体来说, 自适应反馈控制脉冲整形方法有以下优点: 第一, 自适应反馈控制脉冲整形方法不需要对实验量子体系建立良好的模型, 这一优势使得飞秒激光脉冲整形技术迅速应用到很多研究方向上, 比如对于液相中的大型多原子分子体系这样的复杂系统, 在理论上只有非常粗糙的模型, 但是通过自适应反馈控制脉冲整形方法就能实现最优控制; 第二, 自适应反馈控制方法不再需要对激光场进行精确测量, 任何能够反映控制效果的参量都能用来进行自适应反馈控制, 这种方法减少了对脉冲激光场的要求限制; 第三, 自适应反馈控制脉冲整形方法获得的最优控制对仪器噪声表现稳定, 因为反馈算法会排除掉不稳定的解; 第四, 利用演化量子体系用最快方式自解薛定谔方程的概念优势以及全自动高重复率激光的技术优势, 自适应反馈控制脉冲整形方法能够进行高强度每秒成百上千次的实验; 第五, 在自适应反馈控制回路中采用新型的量子系综能够完全避免量子体系测量过程中的倒退问题 [2].

5 飞秒激光脉冲整形技术的应用

飞秒激光脉冲整形技术在超快领域应用范围十分广泛, 自适应反馈控制方法的出现进一步拓展了飞秒激光脉冲整形技术的适用性, 以下介绍其主要的几种应用.

5.1 分子动力学中的应用

由于分子动力学过程持续时间很短, 通常在飞秒量级, 因此飞秒激光脉冲常用于分子动力学过程的研究, 而飞秒激光脉冲整形技术通过对激光脉冲形状的操控能够实现分子动力学过程的有效控制, 以下给出飞秒激光脉冲整形技术在分子动力学中的几种主要应用.

5.1.1 分子多光子吸收控制

分子的多光子吸收是一种典型的非线性过程, 是指分子能够同时吸收两个或者多个光子从基态跃迁到高激发态的过程, 多光子吸收在多光子显微镜、光谱学、物性研究、同位素分离和光化学等领域有着重要的应用. 利用飞秒激光脉冲整形技术对分子多光子吸收过程进行控制有着十分重要的意义, 可以极大地拓展分子多光子吸收在各种相关领域的应用.

早在1973年, Makhaneek等^[56]就对分子中双光子吸收过程进行了理论研究; 1998年, González-Díaz^[57]对分子的多光子吸收过程做了进一步的理论分析和拓展. 飞秒激光脉冲整形技术的出现, 使得对多光子吸收过程的操控得以实现, 结合自适应反馈控制方法就能够完成分子多光子吸收的最优增强. Lee等^[58]基于退火算法的自适应反馈控制脉冲整形方法实现了DCM溶液中双光子荧光的最优增强, 实验结果表明双光子荧光增强的最优脉冲是负啁啾脉冲, 并指出双光子荧光的增强是由于激发态波包的局域化. Wada等^[59]基于基因遗传算法的自适应反馈控制脉冲整形方法实现了茈菀溶液中双光子荧光的增强, 实验结果表明最优脉冲是具有特定重复率的脉冲串, 并解释了荧光增强的机制与分子中的动力学过程的关系. Zhang等^[60]同样基于基因遗传算法自适应反馈控制脉冲整形技术在香豆素515溶液中实现了双光子荧光的最优控制, 实验结果表明双光子荧光强度能够增强大约20%, 而且最优脉冲是正啁啾脉冲, 同时还研究了双光子荧光强度与脉冲的啁啾调制之间的关系, 证实了分子双光子吸收有效粒子数布居转移的理论

模型. 此外, 他们利用相位跳跃调制方法实现了二氯荧光黄溶液中双光子荧光的增强^[61], 并运用分子激发态波包干涉解释双光子荧光增强的物理机制. 最近, 他们进一步研究了各向同性分子体系中双光子吸收过程的偏振和相位调制^[62], 理论结果表明激光从线偏振到圆偏振的变化过程中, 双光子吸收会降低, 而且偏振的变化不会影响光谱相位整形的控制效率, 并以香豆素480为实验对象进行了双光子荧光偏振与相位控制实验, 证实了这些理论结论.

5.1.2 分子光电离解离控制

在光化学领域, 对分子解离产物进行选择控制一直是人们努力的目标. 在过去的十几年间, 自适应反馈控制飞秒激光脉冲整形技术朝着这个目标取得了重大的进展. 1998年, Gerber等^[63]利用自适应反馈控制飞秒激光脉冲整形技术首次实现了分子光解离的选择性量子控制, 研究对象是一种有机金属络合物 $\text{CpFe}(\text{CO})_2\text{Cl}$ (其中Cp为 C_5H_5), 这种络合物中含有独特的金属配位键, 而且在与整形的飞秒激光脉冲作用时有不同的解离通道. 通过采用自适应反馈控制脉冲整形技术实现解离产物 $[\text{CpFe}(\text{CO})_2\text{Cl}]^+ / [\text{FeCl}]^+$ 分支比例的最大化和最小化, 这一实验取得的巨大成功掀起了分子光解离领域的研究热潮. 此外, 他们研究五羰基铁 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ 的光电离解离过程^[64,65], 实现解离产物 $[\text{Fe}(\text{CO})_5]^+ / \text{Fe}^+$ 分支比例的最优控制, 研究结果表明其中的控制机制并不仅仅是简单的强度依赖关系, 光谱相位分布能够调节激发分子振动波包动力学过程使其朝着目标反应通道进行. Damrauer等^[66]以 CH_2ClBr 为研究对象, 利用自适应反馈控制脉冲整形技术对解离产物 $[\text{CH}_2\text{Cl}]^+ / [\text{CH}_2\text{Br}]^+$ 分支比进行了最大化和最小化控制, 进一步证实了控制机制中除了强度依赖效应外, 还包含了对波包动力学过程的操控.

2001年, Levis等^[67]利用经过整形的强飞秒激光脉冲实现了在有机多原子分子中特定化学键的断裂和重排, 研究对象包括处于气相的 $(\text{CH}_3)_2\text{CO}$, CH_3COCF_3 以及 $\text{C}_6\text{H}_5\text{COCH}_3$. 实验得到的结果是从 $(\text{CH}_3)_2\text{CO}$ 中形成 CH_3CO , 从 CH_3COCF_3 中形成 CH_3 或者 CF_3 , 从 $\text{C}_6\text{H}_5\text{COCH}_3$ 中形成 $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$ 的过程都能以很高的选择性实现. 整形后的强飞秒激光场(大约 $10^{13} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$)产生的动态Stark位移能够使很多激发态达到共振激发, 从而促进跃迁的发生, 有效地提高可用带宽, 这种

效应开拓了很多在弱场情况下由于共振限制无法进行的反应路径. 虽然复杂强场动力学过程的理论处理十分困难, 但是实验中采用自适应反馈控制脉冲整形方法不会受到影响, 因为自适应反馈控制中分子能够在飞秒的时间尺度上解出自身的薛定谔方程, 在高速循环控制条件下, 闭环控制回路中的自学习算法通常只需几分钟就能获得最优激光脉冲.

Levis等开展的一系列实验证实了利用飞秒激光脉冲整形技术对化学反应进行选择控制的可能性. 自适应反馈控制脉冲整形技术作为一种新型的反应操控方法受到了广泛关注, 很多研究人员用这种方法对不同的化学反应体系进行了大量的研究. 比如Wöste等^[68-70]研究了碱金属团簇光电离和光解离的动力学过程控制; Jones等^[71]研究了 S_8 分子在强激光场下光解离产物 S_N^+/S_M^+ (N 和 M 是不同的值)的分支比例, 实验结果表明最优整形脉冲的控制效果比傅里叶变换极限脉冲好得多; Wells等^[72]通过控制瞬态 CO_2^+ 振动布居数分布来操控 CO_2^+ 与 $C^+ + O^+$ 产物的分支比例; Hill等^[73]通过控制高价电离 CO_2 弯曲振动模式振幅来增强对称的六价离子碎裂通道 $CO_2^{6+} \rightarrow O^{2+} + C^{2+} + O^{2+}$, 并将激光光谱相位做泰勒展开来说明光电离动力学的控制过程; Laarmann等^[74,75]利用飞秒激光脉冲整形技术实现了氨基酸复合物中打断强主键而不改变弱键的操作, 基于这些结果他们提出使用自适应反馈控制方法得到最优整形的激光脉冲能够作为复杂多原子体系质谱的分析工具.

5.1.3 分子排列取向控制

多原子分子具有一定的方向性, 通常情况下体系中分子的排列是杂乱无章的, 但是可以通过适当的办法使体系的分子在某些方向的排列程度增大. 沿着某个特定方向排列的分子具有一些重要特性, 比如能够使得某些化学反应的概率大大增强, 因而分子的排列取向控制吸引了研究人员的广泛关注. 在高强度激光场下分子极化的动态变化对取向有很大的影响, 通过对强飞秒激光脉冲进行适当的整形就能实现分子取向控制. 激光诱导分子取向的量子电动力学过程已经能够在理论上进行处理和优化, 而且用简单的超快激光脉冲就能成功实现^[76-80]. 飞秒激光脉冲整形技术提供了一种控制分子排列取向的有效工具.

Zhang等^[81]提出利用周期性方波相位调制的

飞秒激光脉冲来控制CO分子排列的方法, 研究表明分子排列程度和瞬态时间结构可以被有效控制, 分子排列程度可以被抑制或者重构, 分子排列瞬态时间结构可以被控制成想要的结构而且分子排列和反排列可以被任意转换. 此外, 他们又提出运用三次相位调制增强分子排列程度的方案^[82], 证实了分子排列既能在整形脉冲作用时绝热地产生又能在整个转动周期内以脉冲作用时相同的排列程度重现. 他们还发现三次相位调制脉冲作用下的分子排列行为与缓慢上升快速下降激光脉冲作用下相同, 但是相同激光强度下三次相位调制脉冲作用下的分子排列程度会稍强一些. Horn等^[83,84]用脉冲整形技术方法以气体的双折射强度为反馈信号进行自适应调制在室温下实现了 N_2 分子排列程度有效增强, 他们证实傅里叶变换极限脉冲能使 N_2 分子排列程度达到最强. 他们还发现在较高的温度下调制效果较好, 当温度降低时, 调制效果变差, 这说明调制作用来源于整体效果而不只是各个转动态的相干动力学过程. Pinkham等^[85]实现了室温下CO分子取向的最优控制, 从理论和实验上都证实相同能量的整形脉冲与超短傅里叶变换极限脉冲能产生同样的分子排列效果. 脉冲整形会导致激光峰值功率降低, 即使激光强度达到了能诱导电离的程度, 也能继续增强分子排列程度. 他们还提出具有固定极化率的刚性转子模型来精确地描述激光诱导的分子动力学过程.

5.1.4 分子能量转移控制

飞秒激光脉冲整形技术还能用于分子尺度能量转移的控制. Kuroda等^[86]以供体-受体大分子为研究对象, 以受体辐射荧光为反馈信号, 通过对激发脉冲的自适应反馈相位调制使得量子发射产率增强了15%, 并对优化过程和最优脉冲特性进行了分析, 分离出能量转移控制机制中的主要因素. 他们证实光谱相位的阶跃函数诱导了供体部分的动力学过程, 描述了供体激发态的相干性质, 通过对激发脉冲的相位调制, 能控制分子中供体受体间的能量转移. 为了证明这个结论, 他们还进行了一个涉及2+1光子控制路径的抽运探测实验, 最优脉冲通过相长干涉促进了到第二激发态的延迟激发.

Batista^[87]对Kuroda等的实验结果进行了进一步的分析, 研究表明实现能量转移效率最大化的最优脉冲是双脉冲结构, 一个尖峰脉冲后伴随着一个次脉冲. 这样的双脉冲控制机制是第一个脉冲分量通过非共振双光子激发使得体系到达第一激发

态, 随后延迟的次脉冲使体系通过单光子跃迁到达第二激发态. 这样的控制机制使得体系绕过了不利的非辐射路径, 使得荧光产量得到增强.

5.2 非线性光谱学中的应用

在非线性光谱学和显微光谱学中, 飞秒激光脉冲整形技术能够用来提高探测的灵敏度和分辨率. 飞秒激光脉冲整形技术在非线性分子光谱学中的一个重要应用就是通过受激拉曼散射对振动模式进行操控. 在气相中, 人们主要利用自反馈控制脉冲整形的高强度激光脉冲通过冲击受激拉曼散射(激光脉冲持续时间比振动周期短)控制分子的振动. 比如, Hornung 等^[88]通过冲击受激拉曼散射实现了 K_2 的振动动力学过程控制, 还采用了不同参量整形的飞秒脉冲进行控制来研究控制的物理机制. 其他的一些气相实验包括六氟化硫(SF_6)中振动模式增强和抑制、二氧化碳(CO_2)中振动模式选择激发^[89]以及四氯化碳(CCl_4)中多模振动波包整形^[90]. 在液相中, Bucksbaum 等^[91-94]以甲醇为研究对象开展了一系列的实验, 由于甲醇碳氢键具有对称和反对称拉伸模式, 通过非冲击受激拉曼散射(激光脉冲的持续时间大于振动周期)激发, 以测量的拉曼光谱为反馈信号对激光脉冲进行整形, 通过自适应反馈控制方法控制其拉曼光谱峰的相对强度, 最终实现振动模式的选择激发. 不过人们认为, 非冲击受激拉曼散射光谱的相对峰值并不能反映振动模式的相对布居数, 实验中对光谱特性的控制主要基于经典非线性效应而不是振动激发的量子干涉.

飞秒激光脉冲整形技术在非线性分子光谱学中的另一个应用是通过相干反斯托克斯拉曼散射对分子振动模式进行控制. Materny 等^[95-100], Zhang 等^[101]以及 Vacano 等^[102]都利用相干反斯托克斯拉曼散射装置结合自适应反馈控制脉冲整形技术实现了复杂分子的振动动力学控制, 实验过程中以相干反斯托克斯拉曼散射谱的强度为反馈信号对泵浦光或者斯托克斯光进行整形. Materny 等做了大分子的自适应反馈控制实验, 实现了对一个振动基态模式的选择性激发, 而对其他模式进行抑制, 不同模式之间的延迟还能调节. Vacano 等对光子晶体光纤获得的宽带脉冲进行整形, 研究了单光束相干反斯托克斯拉曼散射, 利用自适应反馈控制方法获得了理想的分子振动模式干涉图案. Potma 等^[103]提出了基于脉冲整形技术的

focus engineering 技术, 用于提高相干反斯托克斯拉曼散射光谱的空间分辨率, 这种技术采用高斯光束(HG00)作为泵浦光, 一阶厄米高斯光束(HG10)作为斯托克斯光, 斯托克斯光的光束轮廓中包含了横向的 π 相位阶跃, 而这种调制正是通过脉冲整形技术实现的. 此外, 他们还通过数值模拟, 分析了这种技术对背景信号的抑制以及对侧向维度化学边界相互作用的增强^[104].

5.3 光纤光学中的应用

由于脉冲整形方法得到的方波与未经整形的脉冲相比有更好的开关特性, 所以在使用光纤非线性耦合器的光开关实验中, 常用脉冲整形来获得飞秒的方波脉冲^[105].

飞秒激光脉冲整形技术还能用于产生暗脉冲. 1988年, Wenier 等^[106]利用飞秒激光脉冲整形技术实现了波长620 nm脉宽185 fs的暗脉冲在单模光纤中的传播, 传播过程中暗脉冲没有展宽, 这是暗孤子在光纤中传播的首次明确证实. 之后 Emplit 等^[107]又成功验证了利用脉冲整形技术产生的暗孤子在远距离光纤中的无畸变传输. 此外, 通过采用相位调制整形脉冲的实验还证实了相位调制的高阶亮孤子的周期演化和再聚焦现象^[108].

5.4 光通信系统中的应用

基于光谱相位编码与解码的超短脉冲光码分多址(CDMA)光通信是一种不同用户采用不同光谱编码共享同一根光纤介质的通信技术, 脉冲整形在这一技术中起到十分关键的作用, 通过多路干涉对正确解码和不正确解码脉冲之间的强度对比识别并接收正确的信息^[109]. 20世纪80年代后期采用固定位相板的脉冲整形技术首次实现了飞秒脉冲的编码与解码^[110], 不久以后飞秒脉冲光码分多址的理论分析就被提出^[111]. 20世纪90年代早期光纤光学技术迅速地发展^[112], 美国普渡大学搭建了一套飞秒CDMA测试系统, 这套系统中包含了脉冲编码、解码、远距离传输编码脉冲的色散补偿和用于区分正确解码与不正确解码脉冲的非线性光学阈值判断系统. 宽带相干光光谱编码还能通过烧蚀材料或者空间全息板来对频域光存储进行寻址, 而在光谱振幅和相位编码中脉冲整形也是不可缺少的一部分. 除了以上这些应用外, 脉冲整形技术还可用来对波分复用技术通信中不同波长成分进行滤波, 比如利用平缓频率响应^[113]和多通道

波分复用增益均衡器^[114]构造波分复用交叉连接开关.

5.5 生物学中的应用

常规的医学成像技术只能达到100 μm 到1 mm的分辨率,这对于癌症和动脉粥样硬化等疾病早期的组织异常检查来说不够灵敏.采用移动镜的脉冲整形装置可以对生物学样品进行快延时光学相干断层成像扫描,目前已经能将这种方法用于内窥镜上,获得了分辨率为10 μm 的兔子胃肠道和呼吸道截面图像^[115,116].脉冲整形还能用于多光子生物光谱学研究^[117],研究发现光谱成分的微小改变就能对生物多光子成像中的非线性过程效率造成显著的影响,可以通过脉冲整形使非线性过程的效率最大化,这样就能使脆弱的生物样品在受到尽量少的激光照射下得到足够清晰的图形.

Batista^[87]把飞秒激光脉冲整形技术控制分子能量转移方面的研究工作进一步应用到光合作用的操控上.实验中他们采用的供体-受体大分子与自然界光合作用体系结构类似,都是通过供体吸收光子并将能量转移到受体上,因此利用飞秒激光脉冲整形技术控制能量转移过程就有可能实现光合作用的增强或抑制.

5.6 飞秒放大器的相位补偿

精确完整的啁啾补偿是飞秒啁啾脉冲放大系统中优化脉冲质量的一项关键问题.大部分强激光在应用中需要极高强度对比度的脉冲,而光谱相位补偿在减小脉冲宽度和抑制压缩脉冲旁瓣上起到了十分重要的作用.在早期的实验中三阶和四阶的光谱相位都是通过调节脉冲整形器里的透镜进行补偿的,这样就能使脉冲的时域侧翼明显地减小.在飞秒放大器中使用可编程脉冲整形器进行相位补偿已经能够得到大约15 fs的短脉冲^[118,119].

在飞秒放大器中使用脉冲整形技术的意义有两个方面:一是通过相位补偿获得持续时间更短质量更好的脉冲;二是降低啁啾脉冲放大系统的搭建难度,即使在搭建啁啾脉冲放大系统时光谱相位未达到最优,也可以通过脉冲整形的调节使其输出脉冲接近傅里叶变换极限.

5.7 带通滤波的应用

脉冲整形器结合放置在傅里叶平面处的可调狭缝就组成了一个可变带通光学滤波器,很多研究

小组已经用这种装置实现了从飞秒的白光连续体系中产生可调谐以及傅里叶变换极限的脉冲,这一技术已经应用于半导体时间分辨光谱学、微结构以及原子气体的强场研究^[120,121].有些实验里还采用两套脉冲整形器从同一个白光连续体系产生不同调谐波段的同步脉冲,这样的带通滤波器还能应用到相干锁模激光器中,可以对脉冲的时域宽度进行控制.此外,该方法还可以应用在非线性波导光子探测器中双光子吸收对脉宽依赖性的测量^[122]以及半导体微腔极化散射的研究^[123].

6 未来展望

由于飞秒激光脉冲整形技术对脉冲控制的强大灵活性,它的应用十分广泛,除了现在已经成熟的应用外,以下几个方面也是飞秒激光脉冲整形技术的未来发展方向.

6.1 量子计算

量子计算是相干控制的一个重要的应用领域.脉冲整形技术能够提供激发的选择性,这是建造实用的量子计算机所需的基石.量子计算机的光学结构中需要反馈控制的脉冲整形部分,Bucksbaum等^[124]证实了这一部分能通过量子相位的控制实现信息的存储和检索,在八能级里德堡原子的情况下,他们将信息以量子相位的形式存储到一个或多个翻转态中,之后还能通过Grover量子算法将信息检索出来,这些实验证实了在不远的将来相干控制应用于量子计算的潜力.此外,最近的一些实验还验证了经典傅里叶光学中的Grover算法^[125].

实现量子计算最重要的一个挑战是抑制退相干.虽然液相分子的核磁共振光谱学技术中退相干时间比较长,是实现量子计算的重要方法^[126],但是它很难解决多量子比特的拓展问题^[127],于是人们开始寻找实现量子计算的新方法.分子和纳米颗粒的光谱学技术是一种很有潜力的方法,但是即便是孤立分子,分子内振动弛豫(IVR)等弛豫过程会明显地影响退相干.对相干控制来说IVR控制也很重要^[128],因为它关系到化学键的选择性.通过脉冲整形限制IVR是在大量分子的体系中实现选择性激发的可行方案.尽管如此,大多数限制IVR的光子中间态方法要用到十分复杂的脉冲整形,对强度和精度的要求十分严格.

与复杂的脉冲整形相比,简单啁啾脉冲能获得很高的强度,可以在不同的应用中采用不同的波长,实现相干控制中的选择性激发^[129].对分子体系的选择性光学控制就和核磁共振光谱仪中对单个自旋的寻址一样独一无二,也为大型光学体系中量子运算提供了可能.相干控制的主要作用是控制一个可观测量,而在量子计算中是通过控制可观测量的方式施加逻辑门.Goswami^[130]提出了用简单的啁啾脉冲抑制退相干的想法,换句话说,就是用整形的光脉冲与量子体系相互作用来保持更长的相干时间,这样就能施加更多数量的逻辑门.与体系相互作用过程中,啁啾脉冲序列中的奇阶项会导致粒子数反转,体系状态发生变化,而偶阶项会产生自诱导透明,体系状态不发生变化.基于啁啾脉冲的这种性质,在二能级体系中将二能级体系处于基态看作逻辑单元0,处于激发态看作逻辑单元1;将反转啁啾脉冲看作逻辑单元1,自诱导透明脉冲看作逻辑单元0.这样脉冲序列与体系相互作用的过程就实现了受控非门的量子逻辑运算.

在量子计算中,当一束调制好的啁啾脉冲序列作用在一定体系上,执行了一系列量子逻辑门,这实际上就构成了整套量子计算.飞秒激光脉冲整形技术对未来量子计算的发展很有可能起到巨大的推动作用.

6.2 生物医学应用

在生物医学的应用方面,激光一般用来诊断,用作外科手术工具或者用来成像.超短脉冲整形技术的迅速发展为其在生物医学方面的应用打下了基础,虽然现在超短脉冲整形技术在生物医学方面很少应用,但是它将来的应用方向十分清晰.

现在三维轮廓测量采用最多的成像方法就是光学相干断层扫描^[131-133]或者采用宽带低相干的白光干涉仪.最近利用光谱调制飞秒激光脉冲整形技术与联合转换相干器相结合就构造出时空联合转换相干器,这项技术的优势是不再需要一维深度扫描,在很大程度上减少了测量时间,获得图像所需的电子运算也大大减少,这样它就能制作成一台全光设备.最初这种设备是用来进行表面测量的,它很方便地拓展到生物样本的断层扫描.另外,由于探测光与样品组织之间没有联系,这是一种非侵入式检测技术.这种技术使人们能够获得亚表面组织形态的高分辨成像,再配合上选择适当的活体组织就有可能实现“光学活检”的目标^[134].

在20世纪80年代后期,人们就已经利用光镊实现了对病毒和细菌的捕获和操纵^[135],现在这样的光镊还能用来定位更大的细胞以及观察细胞各个组件的生物力学过程.而采用脉冲整形技术调制的光脉冲,就有可能实现对特定组件运动的操控.脉冲整形技术已经在化学反应的相干控制实验中证明了它在化学中的应用潜力,我们相信在不远的将来能够用光镊控制细胞的特定组件,诱导一些反应或者调节这一部分的功能.采用宽带光源,这种技术还可能识别即将癌变的细胞^[136],尤其是组织的上皮细胞.这种方法是通过探测细胞核的尺寸来判断细胞是否有癌变的倾向,一旦发现即将癌变的细胞,就利用整形的脉冲去触发细胞核的光反应,阻止细胞变成癌细胞或者对细胞进行破坏.所以超快脉冲整形技术可能不仅能用来进行癌症诊断,还能用来进行癌症的治疗.

6.3 新型半导体器件

半导体量子点是一种通过量子限制控制电学性质的微尺寸量子结构,这种微结构的光谱与原子类似,都是分离而尖锐的谱线.原子与量子点之间的相似性表明对量子点也有可能进行相干光学相互作用.与更高维度的半导体体系相比,量子点利用相干光学相互作用进行波函数控制的方式与原子相似,但是具有固态体系的技术优势.因此,原子中相干控制的结果能很好地适用到量子点的局部量子态以实现特定能级波函数的控制.Steel等^[137]利用皮秒的激发光进行单个量子点激发的相干控制,激光时间尺度比量子点退相干时间尺度短,通过两束偏振可调且相互之间延迟可调的激光脉冲能够实行对激子波函数的操纵.这些实验为未来量子计算的不同实现方案以及相干信息处理和转换提供了可能性,对寻址和量子单元的相干控制十分重要.

人们已经预言了一些采用飞秒激光脉冲整形技术的新型光电器件,比如基于非掺杂量子阱的光开关.Neogi等^[138]证实这种光器件的性能依赖于光学非线性程度,除了系统的弛豫时间,通过脉冲整形对耦合脉冲激光场进行脉冲形状、延迟或者峰值功率的控制都能用来对非掺杂半导体量子阱的带间跃迁进行操纵来增强开关性能.他们还展示了如何通过耦合激光场诱导光学子带间跃迁来控制半导体量子阱带间跃迁的光学非线性,从而导致强烈的共振和超快的带间非线性响应.

飞秒激光脉冲整形技术应用于半导体量子点材料有可能获得性能优异的半导体器件,这也是一个十分有潜力的发展方向。

7 结 论

飞秒激光脉冲整形技术自从被提出以来就一直受到广泛的关注,飞秒激光脉冲整形技术的应用范围也越来越广泛.尤其在过去的十几年间发展十分迅速,在很多研究方向上起到了关键的作用,比如通过光与物质的相互作用控制分子内振动转动,在光通信中实现tb/s的高速数据传输以及在生物医学中对细胞部件的操控.在不同的应用条件下,需要根据应用的需求搭建合适的脉冲整形光路,而自适应反馈控制技术的应用使得最优脉冲整形得以方便地实现,将飞秒激光脉冲整形技术的发展又推向了一个新的高度.随着飞秒激光脉冲整形技术的不断成熟,相信在不远的将来在生物医学以及量子计算等领域的应用也会取得令人瞩目的成果.可以这么说,飞秒激光脉冲整形技术依然有着巨大的潜力等待发掘.

参考文献

- [1] Weiner A M 2000 *Rev. Sci. Instrum.* **71** 1929
- [2] Brif C, Chakrabarti R, Rabitz H 2010 *New J. Phys.* **12** 75008
- [3] Goswami D 2003 *Phys. Reports* **374** 385
- [4] Weiner A M 2011 *Opt. Commun.* **284** 3669
- [5] Fork R L, Greene B I, Shank C V 1981 *Appl. Phys. Lett.* **38** 671
- [6] Shank C V, Fork R L, Yen R, Stolen R H, Tomlinson W J 1982 *Appl. Phys. Lett.* **40** 761
- [7] Kashyap R, Chernikov S V, McKee P F, Taylor J R 1994 *Electron. Lett.* **30** 1078
- [8] Froehly C, Colombeau B, Vampouille M 1983 *Prog. Opt.* **20** 63
- [9] Weiner A M, Heritage J P 1987 *Rev. Phys. Appl.* **22** 1619
- [10] Weiner A M 1999 *International Trends in Optics and Photonics* (Berlin: Springer Heidelberg) p233
- [11] Weiner A M, Kan'An A M 1998 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **4** 317
- [12] Judson R S, Rabitz H 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 1500
- [13] De Gennes P G 1974 *The Physics of Liquid Crystals* (Oxford: Clarendon Press) p82
- [14] Weiner A M, Leaird D E, Patel J S, Wullert J R 1990 *Opt. Lett.* **15** 326
- [15] Weiner A M, Leaird D E, Patel J S, Wullert J R 1992 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **28** 908
- [16] Wefers M M, Nelson K A 1995 *Opt. Lett.* **20** 1047
- [17] Brixner T, Gerber G 2001 *Opt. Lett.* **26** 557
- [18] Ninck M, Galler A, Feurer T, Brixner T 2007 *Opt. Lett.* **32** 3379
- [19] Weise F, Lindinger A 2009 *Opt. Lett.* **34** 1258
- [20] Miao H, Weiner A M, Mirkin L, Miller P J 2007 *Opt. Lett.* **32** 2360
- [21] Miao H, Weiner A M, Mirkin L, Miller P J 2008 *IEEE Photo. Tech. Lett.* **20** 545
- [22] Mu Q, Cao Z, Hu L, Li D, Xuan L 2006 *Opt. Express* **14** 8013
- [23] Wolfe J E, Chipman R A 2006 *Appl. Opt.* **45** 1688
- [24] Wang X, Pouch J, Anderson J E, Bos P J, Miranda F, Wang B 2004 *Opt. Eng.* **43** 2769
- [25] Wilson J W, Schlup P, Bartels R A 2007 *Opt. Express* **15** 8979
- [26] Frumker E, Silberberg Y 2007 *Opt. Lett.* **32** 1384
- [27] Baxter G, Frisken S, Abakoumov D, Zhou H, Clarke I, Bartos A, Poole S 2006 *Optical Fiber Communication Conference* Anaheim, California, March 5, 2006 OTuF2
- [28] Hillegas C W, Tull J X, Goswami D, Strickland D, Warren W S 1994 *Opt. Lett.* **19** 737
- [29] Tull J X, Dugan M A, Warren W S 1997 *Advances in Magnetic and Optical Resonance* (Vol. 20) (New York: Academic Press) p1
- [30] Fetterman M, Goswami D, Keusters D, Yang W, Rhee J, Warren W 1998 *Opt. Express* **3** 366
- [31] Tian P, Keusters D, Suzuki Y, Warren W S 2003 *Science* **300** 1553
- [32] Pearson B J, Weinacht T C 2007 *Opt. Express* **15** 4385
- [33] Shim S, Strasfeld D B, Fulmer E C, Zanni M T 2006 *Opt. Lett.* **31** 838
- [34] Dugan M A, Tull J X, Warren W S 1997 *JOSA B* **14** 2348
- [35] Kwong K F, Yankelevich D, Chu K C, Heritage J P, Dienes A 1993 *Opt. Lett.* **18** 558
- [36] Tearney G J, Bouma B E, Fujimoto J G 1997 *Opt. Lett.* **22** 1811
- [37] Zeek E, Maginnis K, Backus S, Russek U, Murnane M, Mourou G, Kapteyn H, Vdovin G 1999 *Opt. Lett.* **24** 493
- [38] Delfyett P J, Florez L T, Stoffel N, Gmitter T, Andreadakis N C, Silberberg Y, Heritage J P, Alphonse G A 1992 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **28** 2203
- [39] Zeek E, Backus S, Bartles R, Kapteyn H, Murnane M 1999 *Conference on Lasers and Electro-Optics* Baltimore, MD, USA, May 23–28, 1999 p186
- [40] Druon F, Chériaux G, Faure J, Nees J, Nantel M, Maksimchuk A, Mourou G, Chanteloup J C, Vdovin G 1998 *Opt. Lett.* **23** 1043
- [41] Braun A, Kane S, Norris T 1997 *Opt. Lett.* **22** 615
- [42] Bruner L R, Albert O, Chériaux G, Mourou G, Norris T, Vdovin G 1999 *Conference on Lasers and Electro-Optics* Baltimore, MD, USA, May 23–28, 1999 p187
- [43] Geremia J M, Zhu W, Rabitz H 2000 *J. Chem. Phys.* **113** 10841

- [44] Omenetto F G, Luce B P, Taylor A J 1999 *JOSA B* **16** 2005
- [45] Brixner T, de Abajo F G, Schneider J, Spindler C, Pfeiffer W 2006 *Phys. Rev. B* **73** 125437
- [46] Brixner T, de Abajo F G, Spindler C, Pfeiffer W 2006 *Appl. Phys. B* **84** 89
- [47] Hertz E, Rouzée A, Guérin S, Lavorel B, Faucher O 2007 *Phys. Rev. A* **75** 31403
- [48] Voronine D V, Abramavicius D, Mukamel S 2006 *J. Chem. Phys.* **124** 34104
- [49] Voronine D V, Abramavicius D, Mukamel S. 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 44508
- [50] Tuchscherer P, Rewitz C, Voronine D V, de Abajo García F J, Pfeiffer W, Brixner T 2009 *Opt. Express* **17** 14235
- [51] Zhu W, Rabitz H 2003 *J. Chem. Phys.* **118** 6751
- [52] Grace M, Brif C, Rabitz H, Walmsley I, Kosut R, Lidar D 2006 *New J. Phys.* **8** 35
- [53] Gollub C, de Vivie-Riedle R 2008 *Phys. Rev. A* **78** 33424
- [54] Gollub C, de Vivie-Riedle R. 2009 *Phys. Rev. A* **79** 21401
- [55] Weiner A M, Leaird D E, Patel J S, Wullert J R 1990 *Opt. Lett.* **15** 326
- [56] Makhanev A G, Korol'kov V S, Fedorov A F 1973 *J. Appl. Spectrosc.* **18** 732
- [57] González-Díaz P F 1998 *J. Mole. Stru. Theochem.* **433** 59
- [58] Lee S, Jung K, Sung J H, Hong K, Nam C H 2002 *J. Chem. Phys.* **117** 9858
- [59] Otake I, Kano S S, Wada A 2006 *J. Chem. Phys.* **124** 14501
- [60] Zhang S A, Sun Z, Zhang X, Xu Y, Wang Z, Xu Z, Li R 2005 *Chem. Phys. Lett.* **415** 346
- [61] Zhang S A, Zhang H, Yang Y, Jia T, Wang Z, Sun Z 2010 *J. Chem. Phys.* **132** 94503
- [62] Lu C H, Zhang H, Zhang S H, Sun Z R 2012 *Chin. Phys. B* **21** 123202
- [63] Assion A, Baumert T, Bergt M, Brixner T, Kiefer B, Seyfried V, Strehle M, Gerber G 1998 *Science* **282** 919
- [64] Bergt M, Brixner T, Kiefer B, Strehle M, Gerber G 1999 *J. Chem. Phys.* **110** 10381
- [65] Brixner T, Kiefer B, Gerber G 2001 *Chem. Phys.* **267** 241
- [66] Damrauer N H, Dietl C, Krampert G, Lee S, Jung K, Gerber G 2002 *Eur. Phys. J. D* **20** 71
- [67] Levis R J, Menkir G M, Rabitz H 2001 *Science* **292** 709
- [68] Daniel C, Full J, González L, Kaposta C, Krenz M, Lupulescu C, Manz J, Minemoto S, Oettel M, Rosendo-Francisco P 2001 *Chem. Phys.* **267** 247
- [69] Vajda, Rosendo-Francisco P, Kaposta C, Krenz M, Lupulescu C, Wöste L 2001 *Eur. Phys. J. D* **16** 161
- [70] Daniel C, Full J, Gonzalez L, Lupulescu C, Manz J, Merli A, Vajda Š, Wöste L 2003 *Science* **299** 536
- [71] Wells E, Betsch K J, Conover C, de Witt M J, Pinkham D, Jones R R 2005 *Phys. Rev. A* **72** 63406
- [72] Wells E, McKenna J, Sayler A M, Jochim B, Gregerson N, Averin R, Zohrabi M, Carnes K D, Ben-Itzhak I 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 15101
- [73] Chen G, Wang Z W, Hill W T III 2009 *Phys. Rev. A* **79** 11401
- [74] Laarmann T, Shchatsinin I, Singh P, Zhavoronkov N, Gerhards M, Schulz C P, Hertel I V 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 201101
- [75] Laarmann T, Shchatsinin I, Singh P, Zhavoronkov N, Schulz C P, Hertel I V 2008 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 74005
- [76] Stapelfeldt H, Seideman T 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 543
- [77] Bisgaard C Z, Poulsen M D, Péronne E, Viftrup S S, Stapelfeldt H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 173004
- [78] Renard M, Hertz E, Lavorel B, Faucher O 2004 *Phys. Rev. A* **69** 43401
- [79] Renard M, Hertz E, Guérin S, Jauslin H, Lavorel B, Faucher O 2005 *Phys. Rev. A* **72** 25401
- [80] Lee K F, Villeneuve D M, Corkum P B, Stolow A, Underwood J G 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 173001
- [81] Zhang S, Lu C, Zhang H, Jia T, Wang Z, Sun Z 2011 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44** 55403
- [82] Zhang S, Lu C, Shi J, Jia T, Wang Z, Sun Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 13408
- [83] Horn C, Wollenhaupt M, Krug M, Baumert T, de Nalda R, Banares L 2006 *Phys. Rev. A* **73** 31401
- [84] de Nalda R, Horn C, Wollenhaupt M, Krug M, Banares L, Baumert T 2007 *J. Raman Spectrosc.* **38** 543
- [85] Pinkham D, Mooney K E, Jones R R 2007 *Phys. Rev. A* **75** 13422
- [86] Kuroda D G, Singh C P, Peng Z, Kleiman V D 2009 *Science* **326** 263
- [87] Batista V S 2009 *Science* **326** 245
- [88] Hornung T, Meier R, Motzkus M 2000 *Chem. Phys. Lett.* **326** 445
- [89] Weinacht T C, Bartels R, Backus S, Bucksbaum P H, Pearson B, Geremia J M, Rabitz H, Kapteyn H C, Murnane M M 2001 *Chem. Phys. Lett.* **344** 333
- [90] Bartels R A, Weinacht T C, Leone S R, Kapteyn H C, Murnane M M 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 33001
- [91] Weinacht T C, White J L, Bucksbaum P H 1999 *J. Phys. Chem. A* **103** 10166
- [92] Pearson B J, White J L, Weinacht T C, Bucksbaum P H 2001 *Phys. Rev. A* **63** 63412
- [93] White J L, Pearson B J, Bucksbaum P H 2004 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **37** L399
- [94] Pearson B J, Bucksbaum P H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 209901
- [95] Zeidler D, Frey S, Wohlleben W, Motzkus M, Busch F, Chen T, Kiefer W, Materny A 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 5231
- [96] Konradi J, Singh A K, Materny A 2005 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **7** 3574
- [97] Konradi J, Scaria A, Namboodiri V, Materny A 2007 *J. Raman Spectrosc.* **38** 1006
- [98] Konradi J, Singh A K, Scaria A V, Materny A 2006 *J. Raman Spectrosc.* **37** 697
- [99] Konradi J, Singh A K, Materny A 2006 *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.* **180** 289
- [100] Scaria A, Konradi J, Namboodiri V, Materny A 2008 *J. Raman Spectrosc.* **39** 739

- [101] Zhang S, Zhang L, Zhang X, Ding L, Chen G, Sun Z, Wang Z 2007 *Chem. Phys. Lett.* **433** 416
- [102] Von Vacano B, Wohlleben W, Motzkus M 2006 *Opt. Lett.* **31** 413
- [103] Krishnamachari V V, Potma E O 2008 *J. Raman Spectrosc.* **39** 593
- [104] Krishnamachari V V, Potma E O 2007 *J. Opt. Soc. Am. A* **24** 1138 <http://dx.doi.org/10.1364/JOSAA.24.001138>
- [105] Weiner A M, Silberberg Y, Fouckhardt H, Leaird D E, Saifi M A, Andrejco M J, Smith P W 1989 *Quantum Electron. IEEE J.* **25** 2648
- [106] Weiner A M, Heritage J P, Hawkins R J, Thurston R N, Kirschner E M, Leaird D E, Tomlinson W J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2445
- [107] Emplit P, Haelterman M, Hamaide J 1993 *Opt. Lett.* **18** 1047
- [108] Warren W S 1988 *Science* **242** 878
- [109] Sardesai H P, Chang C C, Weiner A M 1998 *Lightw. Technol. J.* **16** 1953
- [110] Weiner A M, Heritage J P, Salehi J A 1988 *Opt. Lett.* **13** 300
- [111] Salehi J A, Weiner A M, Heritage J P 1990 *Lightw. Technol. J.* **8** 478
- [112] Tsuda H, Takenouchi H, Ishii T, Okamoto K, Goh T, Sato K, Hirano A, Kurokawa T, Amano C 1999 *Wavelength Division Multiplexing Components* Washington D. C. United States, January 1, 1999 p206
- [113] Patel J S, Silberberg Y 1995 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **7** 514
- [114] Ford J E, Walker J A 1998 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **10** 1440
- [115] Tearney G J, Bouma B E, Fujimoto J G 1997 *Opt. Lett.* **22** 1811
- [116] Tearney G J, Brezinski M E, Bouma B E, Boppart S A, Pitris C, Southern J F, Fujimoto J G 1997 *Science* **276** 2037
- [117] Bardeen C J, Yakovlev V V, Squier J A, Wilson K R, Carpenter S D, Weber P M 1999 *J. Biomed. Opt.* **4** 362
- [118] Backus S, Durfee III C G, Murnane M M, Kapteyn H C 1998 *Rev. Sci. Instrum.* **69** 1207
- [119] Maine P, Strickland D, Bado P, Pessot M, Mourou G 1988 *Quantum Electron. IEEE J.* **24** 398
- [120] Ulman M, Bailey D W, Acioli L H, Vallee F G, Stanton C J, Ippen E P, Fujimoto J G 1993 *Phys. Rev. B* **47** 10267
- [121] Sanders G D, Sun C, Fujimoto J G, Choi H K, Wang C A, Stanton C J 1994 *Phys. Rev. B* **50** 8539
- [122] Zheng Z, Weiner A M, Marsh J H, Karkhanehchi M M 1997 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **9** 493
- [123] Baumberg J J, Armitage A, Skolnick M S, Roberts J S 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 661
- [124] Ahn J, Weinacht T C, Bucksbaum P H 2000 *Science* **287** 463
- [125] Bhattacharya N, Van den Heuvell H V L, Spreeuw R 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 137901
- [126] Gershenfeld N A, Chuang I L 1997 *Science* **275** 350
- [127] Warren W S 1997 *Science* **277** 1688
- [128] Goswami D, Sandhu A S 2001 *Advances in Multi-photon Processes and Spectroscopy* (Vol. 14) (Singapore: World Scientific) p132
- [129] Melinger J S, Gandhi S R, Hariharan A, Goswami D, Warren W S 1994 *J. Chem. Phys.* **101** 6439
- [130] Goswami D 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 177901
- [131] Benaron D A, Cheong W, Stevenson D K 1997 *Science* **276** 2002
- [132] Yasuno Y, Nakama M, Sutoh Y, Itoh M, Mori M, Yatagai T 2000 *Opt. Commun.* **186** 51
- [133] Rollins A, Yazdanfar S, Kulkarni M, Ung-Arunyawee R, Izatt J 1998 *Opt. Express* **3** 219
- [134] Tearney G J, Brezinski M E, Bouma B E, Boppart S A, Pitris C, Southern J F, Fujimoto J G 1997 *Science* **276** 2037
- [135] Ashkin A, Dziedzic J M 1987 *Science* **235** 1517
- [136] Backman V, Gurjar R, Badizadegan K, Itzkan I, Dasari R R, Perelman L T, Feld M 1999 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **5** 1019
- [137] Bonadeo N H, Erland J, Gammon D, Park D, Katzer D S, Steel D G 1998 *Science* **282** 1473
- [138] Neogi A, Yoshida H, Mozume T, Wada O 1999 *Opt. Commun.* **159** 225

REVIEW

Femtosecond pulse shaping technology and its applications*

Yao Yun-Hua¹⁾ Lu Chen-Hui¹⁾ Xu Shu-Wu¹⁾²⁾ Ding Jing-Xin¹⁾ Jia Tian-Qing¹⁾
Zhang Shi-An^{1)†} Sun Zhen-Rong¹⁾

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

2) (*School of Sciences, Nantong University, Nantong 226007, China*)

(Received 22 April 2014; revised manuscript received 26 May 2014)

Abstract

By controlling the spectral amplitude, phase and polarization of the femtosecond laser pulse in the frequency domain, a shaped femtosecond laser pulse with almost arbitrary pulse shape in time domain can be obtained, and this femtosecond laser pulse shaping technique provides a new experimental tool to study the nonlinear interaction between light and atoms or molecules. In this paper, we introduce the development history, technical method, control technique and relevant applications of the femtosecond laser pulse shaping technique, and also carry out a prospect on the research trends of this technique.

Keywords: femtosecond laser, pulse shaping, coherent control, optimal control

PACS: 42.50.-p, 33.80.-b, 32.80.-t, 42.65.Dr

DOI: [10.7498/aps.63.184201](https://doi.org/10.7498/aps.63.184201)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11004060, 51132004) and the Shanghai Rising-Star Program, China (Grant No. 12QA1400900).

† Corresponding author. E-mail: sazhang@phy.ecnu.edu.cn