

文章编号:1005-4642(2021)04-0017-05

基于法布里-珀罗干涉仪的窄带宽激光脉冲产生及其应用

杨域博, 陆浩宇, 张文凯

(北京师范大学 物理学系 应用光学北京市重点实验室, 北京 100875)

摘要:法布里-珀罗干涉仪的原理是多光束干涉, 由于干涉仪内部是谐振腔结构(F-P腔), 当入射光的频率满足共振条件时, 透射频谱会出现很高的峰值. 利用这一特性对输入的光信号进行频率筛选, 从而得到理想的窄带宽脉冲信号. 本文简要介绍了 F-P 腔的基本原理, 以及利用 F-P 干涉仪产生窄带宽脉冲的过程, 并介绍了该窄带宽脉冲在飞秒受激拉曼光谱、和频振动光谱和二维红外光谱等前沿光谱技术中的应用.

关键词:法布里-珀罗干涉仪; 窄带宽脉冲; 飞秒受激拉曼光谱; 和频振动光谱; 二维红外光谱

中图分类号: O43 **文献标识码:** A **DOI:** 10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.04.003

法布里-珀罗干涉仪(F-P干涉仪)是一种重要的光学仪器, 其主要原理是多光束干涉. 由于 F-P 干涉仪内部是谐振腔结构(F-P腔), 当入射光的频率满足其共振条件时, 透射频谱会出现很高的峰值. F-P干涉仪被广泛应用于通信、激光和光谱学领域, 用于精确测量和控制光的频率和波长. 在实际应用中, F-P干涉仪能够产生十分狭窄、边缘清晰并且十分明亮的干涉条纹, 并与全黑的背景有效区分开来, 因此常被用来搭配 CCD 摄像装置和计算机用于研究光谱线超精细结构^[1-2]. 此外, F-P干涉仪的原理还可以应用于制造谐振腔和半导体激光器. 本文将简要介绍 F-P干涉仪在飞秒受激拉曼光谱、和频振动光谱和二维红外光谱等前沿光谱技术中的应用.

1 F-P干涉仪的基本原理

F-P干涉仪通常由2块平行放置的平板玻璃构成, 2块玻璃相对的内表面都具有高反射率. 当入射光进入 F-P干涉仪中, 在2块平板玻璃之间来回多次反射, 当入射光的频率满足其共振条件时, 透射频谱会出现很高的峰值, 对应很高的透射率. 在实际应用中, 由于 F-P干涉仪对2块平板玻璃的平行度要求很高, 人们又制造出球面镜 F-P干涉仪, 如图1所示. 球面镜 F-P干涉仪是

共焦腔, 干涉仪中的平板玻璃使用2块曲率半径相同的且在内侧镀有高反射膜的球面镜代替, 两球面镜之间的距离即为腔长, 大小等于球面镜的曲率半径. 为了实现对波长的扫描, 将其中一块球面镜设置为定镜, 另一块球面镜固定在压电陶瓷上, 作为动镜(随着电压的线性变化可以前后移动). 光线进入干涉仪后被反射4次, 最终出射的光满足谐振条件: $4d = k\lambda$, $k = 1, 2, 3 \dots$ 其中, d 为腔长, λ 为光的波长. 当利用电压驱动压电陶瓷改变腔长为 d' 时, 满足谐振条件 $4d' = k\lambda'$, $k = 1, 2, 3 \dots$ 的波长为 λ' 的光才能出射, 而其他波长的光将被相互抵消^[3], 实现滤波的效果, 从而可以得到特定频率或波长的信号. 因此, 如果让宽带的光脉冲信号通过该球面镜 F-P干涉仪, 最后出射的脉冲信号是满足谐振条件的窄带脉冲.

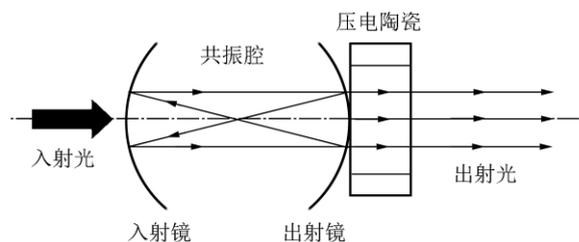


图1 球面镜 F-P干涉仪^[3]

收稿日期: 2021-04-08

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(No. 21773012)

作者简介: 杨域博(2000—), 男, 湖北荆州人, 北京师范大学物理学系 2018 级本科生.

陆浩宇(1999—), 男, 安徽池州人, 北京师范大学物理学系 2018 级本科生.

通讯作者: 张文凯(1978—), 男, 山西平遥人, 北京师范大学物理学系教授, 博士, 研究方向为超快激光技术及应用. E-mail: wkzhang@bnu.edu.cn



2 F-P 干涉仪的应用

2.1 用于飞秒受激拉曼光谱

拉曼光谱是基于拉曼散射效应的散射光谱,是分析分子振动和转动的有效工具,可以反映样品分子结构以及动力学等特征.随着激光及非线性光学技术的发展,利用拉曼光谱技术可以测量样品激发态上的分子振动模式,从而将其与基态进行区分^[4].飞秒受激拉曼光谱(Femtosecond stimulated Raman spectroscopy,FSRS)是一种前沿的时间分辨振动光谱技术,它将拉曼光谱对分子振动的灵敏度和超快时间分辨技术相结合,可用在飞秒时间分辨率研究分子激发态的结构动力学特征.例如光合作用体系中的激发态质子传递过程通常发生在 $10\text{ fs}\sim 10^2\text{ ps}$ 时间尺度上,因此必须使用 FSRS 等具有飞秒时间分辨率的光谱技术才能有效探测到此过程中分子结构的变化^[5].

FSRS 的实现需要宽带飞秒泵浦脉冲和探测脉冲同步的窄带宽皮秒拉曼泵浦脉冲.因此,需要利用飞秒激光器产生的飞秒脉冲产生窄带宽脉冲,常用的方法包括光栅滤波和窄带宽干扰滤波技术.然而光栅滤波技术的能量效率较低,窄带宽干扰滤波技术的调谐范围小、带宽大,且容易受到激光损伤.F-P 干涉仪对待透过的光具有选择性,满足谐振条件的光才能出射,因此利用其制作

滤波器.F-P 滤波器具有高能量透过率和更小的带宽,弥补了光栅滤波器和窄带宽干扰滤波器的劣势.

F-P 滤波器得到的时域脉冲形状相比光栅滤波器、窄带宽干扰滤波器得到的脉冲形状更适合应用于 FSRS.一般来说,光栅滤波器和窄带宽干扰滤波器得到的脉冲通常是高斯线型(图 2),但是如果带宽调节得不够窄,产生的脉冲信号两端会出现其他振荡线型,导致脉冲的线型发生变化,干扰后续的 FSRS 信号分析.

实验和仿真结果如图 3~4 所示.

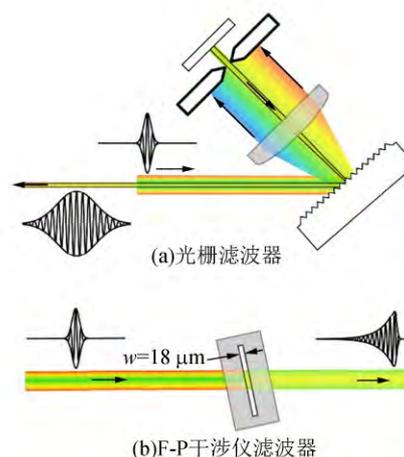


图 2 光栅滤波器和 F-P 干涉仪滤波器输入和输出脉冲的时域波形示意图^[6]

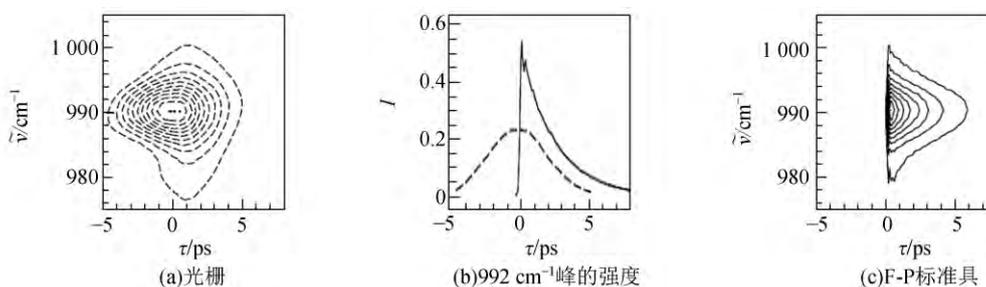


图 3 实验测量拉曼泵浦和探测脉冲之间的时间延迟对苯的 992 cm^{-1} 模式的受激拉曼信号的影响比较^[6]

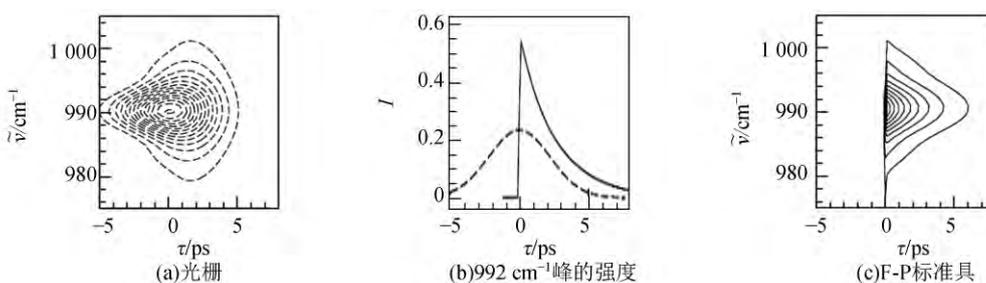


图 4 使用本文概述的理论对图 3 中的数据进行模拟^[6]

可以看出,使用光栅滤波器时拉曼泵浦和探测脉冲之间的时间延迟对谱线形状也会产生较大影响[图 3(a)和图 4(a)]. F-P 滤波器得到的通常是时域不对称的线型(图 2),研究发现,带宽仅影响线型的宽度,并不会影响脉冲的线型. 而且时域非对称线型可以有效地抑制非共振背景,同时增强信号的强度[图 3(b)和图 4(b)],拉曼泵浦和探测脉冲之间的时间延迟对谱线形状产生的影响相对较小[图 3(c)和图 4(c)]. 这对于 FSRS 实验来说是非常有利的^[6-7].

2.2 用于和频振动光谱

和频振动光谱(Sum-frequency generation spectroscopy, SFG)是非线性激光光谱技术^[8],主要用于物质界面和表面的分析. SFG 对物质的表面极为敏感,可以用于探测气/液、气/固、液/固、固/固等表界面处分子的振动模式. 大多数光谱学方法研究的是物质体相的光谱, SFG 具有独特的界面选择性,使得人们可以专门研究界面处的物质的光谱,这促进了表面科学和界面科学的发展^[9].

SFG 通常使用 2 束激光脉冲在物质表界面处重叠,其中一束激光为频率固定的可见光,称为可见泵浦脉冲;另一束激光为频率可以调节的红外光,称为红外探测脉冲^[10]. 当红外光的能量被分子吸收之后,能够实现分子从基态到激发态的跃迁,同时可见光能通过反斯托克斯拉曼过程让分子向能量更高的受激虚态跃迁. 由于受激虚态的不稳定性,分子又会跃迁回基态,此时将会产生光子,频率为 2 种入射光的频率之和. 发出的光信号具有特定的角度,并且能被探测到,因而通过监测入射光和出射光信号,能够得到有关物质界面分子振动模式的信息.

在皮秒激光系统中,红外光光谱带宽较窄(最常见的为 $\sim 6\text{ cm}^{-1}$),要想获得完整的光谱,需要让光束在整个波段范围内依次进行扫描,该方法称为扫描 SFG 技术. 在飞秒激光系统中,飞秒红外脉冲光谱带宽较大($\sim 100\text{ fs}$ 脉冲对应 $150\sim 200\text{ cm}^{-1}$ 光谱带宽),如果光谱范围完全被红外脉冲带宽所覆盖,则需要进行光谱扫描,该方法称为宽带 SFG(BB-SFG)技术. 实验表明,降低可见光窄带脉冲的带宽能有效提高 BB-SFG 光谱的分辨率. 王鸿飞研究组利用同步的飞秒激光器和皮秒激光器分别产生的宽带飞秒脉冲和窄带皮秒脉

冲,实现了 0.6 cm^{-1} 的高光谱分辨率^[11]. 除此之外,还可以通过使用光栅和狭缝的组合或者 F-P 标准具来实现,其中 F-P 标准具相对来说更能节省空间.

图 5 为使用 F-P 标准具降低可见光脉冲带宽的 BB-SFG 实验装置图. 通过光参量放大器生成的是宽带红外脉冲,通过 F-P 标准具产生的是窄带可见皮秒脉冲,这种窄带可见光脉冲也是时域非对称的脉冲,能够有效降低 SFG 光谱的非共振背景^[7].

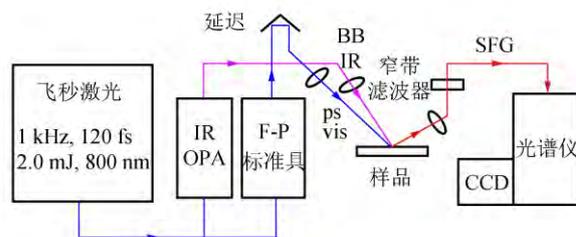


图 5 BB-SFG 系统结构示意图^[7]

为了达到最佳效果, Kim 研究组使用了 2 个 F-P 标准具来提高光谱分辨率^[12]. 使用 2 个标准具得到的窄带宽脉冲光谱相对于使用 1 个标准具得到的光谱来说,干扰显著降低了^[13]. 由图 6 可以清楚地看到,使用 2 个标准具对脉冲信号进行过滤,能有效降低脉冲的带宽,从而提高 SFG 光谱的分辨率.

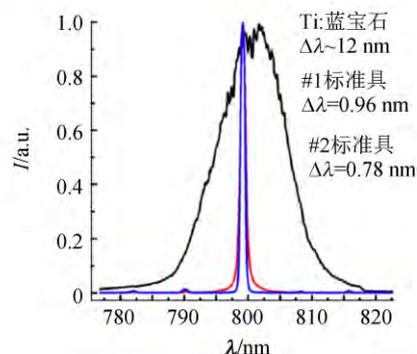


图 6 不使用标准具得到的脉冲信号(黑色)和分别使用 1 个标准具(红色)、2 个标准具(蓝色)过滤后的脉冲信号对比示意图^[12]

2.3 用于二维红外光谱

量子系统的许多重要性质不能从线性光谱学中推断出来,而必须用非线性光谱技术来研究. 二维红外光谱是近几十年发展起来的三阶非线性

超快时间分辨光谱技术. 二维红外光谱图具有 2 个光频率维度, 第 3 个维度则是二维光谱峰的强度. 由于通常使用等高线图, 因此通常展示为二维的光谱图, 该二维光谱图揭示了激发频率和探测频率之间的相关性. 与其他超快光谱方法相比, 二维红外光谱是同时具有高时间分辨率和高光谱分辨率的非线性光谱方法, 可用于在飞秒时间尺度上实现各种超快过程. 近年来, 二维红外光谱方法在前沿研究领域得到了广泛的应用. 二维红外光谱包含有关研究系统的大量信息, 其峰值幅度、位置和线形与系统内部发生的各种过程有关. 二维红外光谱中沿对角线的峰称为对角峰, 其反映了对应的线性吸收光谱的动态信息. 不在对角线上的峰称为交叉峰, 其出现意味着研究系统的 2 个对应能级是耦合的, 此时, 当飞秒激光脉冲泵浦其中一个能级时, 另一个能级会做出响应. 这种耦合可能与分子之间的能量转移、电荷转移和振动耦合等过程有关. 二维红外光谱可以观察分子中不同振动模式之间的相互作用, 从中可以获得有关分子结构、能量转移或电子转移的信息. 并且可以提供远多于一维红外光谱所能提供的信息. 例如, 当 1 组吸收峰包含许多具有相近振动模式的基团时, 可以分辨一维红外光谱无法分辨的不同振动模式. 因此, 二维红外光谱可以用来更好地区分不同的分子, 尤其是结构相似的分子.

目前, 对于二维红外光谱实验装置的 optics 设计, 存在多种方法, 且每种方法都有其自身的优点和局限性. 最早的二维红外光谱由 Hochstrasser 研究组通过烧孔法实现^[14], 该方法通过用窄带泵浦脉冲扫描不同泵浦波长来记录二维光谱, 其本质是具有泵浦波长分辨的泵浦-探测实验.

基于 F-P 滤波器的烧孔法二维红外光谱实验装置如图 7 所示^[15], 首先将 1 束强而超短 (通常为 100 fs) 的宽带 (约为 200 cm^{-1}) 红外激光脉冲^[16] 分成 2 束, 能量小的光束作为探测光, 能量大的光束进入可调 F-P 滤波器, 出射的红外脉冲从宽带的飞秒光 ($\sim 150\text{ cm}^{-1}$, 100 fs) 变成了窄带宽的皮秒光 ($\sim 15\text{ cm}^{-1}$, 1.5 ps). 利用该皮秒光作为泵浦脉冲对样品进行激发, 经过一定时间延迟后再通过宽带的探测脉冲探测样品被激发后的情况. 经过样品后, 探测脉冲通过光栅分光然后由红外探测器探测光强度. 通过扫描泵浦

脉冲的波长, 可得到特定时间延迟的二维红外光谱. 再改变时间延迟得到一系列二维红外光谱, 通过分析得到分子振动的演化过程, 从而得到有关分子结构和动态变化的信息^[17].

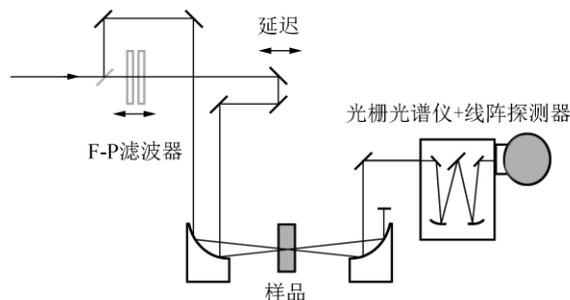


图 7 基于 F-P 滤波器的烧孔法二维红外光谱实验示意图^[15]

在基于 F-P 滤波器的烧孔法二维红外光谱实验中, 激发频率由 F-P 干涉仪扫描皮秒光的频率得到 (改变加在压电片上的电压), 检测频率由光栅光谱仪和线阵探测器探测. 因此, 最后的二维光谱图谱没有由时间抖动引起的相位差^[17].

一般来说, 相对于傅里叶变换二维红外光谱, 基于 F-P 滤波器的烧孔法二维红外光谱是更简单、更快速的实验, 需要控制的实验参量也更少, 它合适于研究比较慢的动态变化 (慢于 1 ps). 此外二维红外光谱技术具有更大的灵活性, 例如测量特定的耦合无需扫描完整二维红外光谱, 只需要探测特定的一段泵浦频率范围^[18].

3 结束语

本文介绍了 F-P 腔的多光束干涉原理, 分析了其产生窄带宽脉冲从而具有高光谱分辨能力的原因, 进而介绍了其在飞秒受激拉曼光谱、和频振动光谱和二维红外光谱技术中的应用. F-P 干涉仪作为滤波器能够通过改变压电陶瓷电压来改变腔长, 调整带宽产生窄带宽脉冲, 进而提高光谱的分辨率. 相比于光栅滤波器和窄带宽干扰滤波器, F-P 滤波器具有高能量透过率和更小的带宽. 在飞秒受激拉曼光谱中, F-P 滤波器得到的通常是时域不对称的线型, 可以有效抑制非共振背景, 同时增强信号的强度. 基于 F-P 滤波器的烧孔法二维红外光谱里没有由时间抖动引起的相位差. 通过对 F-P 干涉仪原理和应用的介绍, 旨在说明其在前沿光谱技术中的重要应用意义, 同时也为

光学原理的教学和科普工作提供参考。在当前物理教学中,越发注重知识的应用性和创新性。希望通过本文的介绍,能为相关物理实验教学提供启发。

参考文献:

- [1] 赵凯华,钟锡华. 光学(上册)[M]. 北京:北京大学出版社,1984:330-342.
- [2] 姚启钧. 光学教程[M]. 6版. 北京:高等教育出版社,2019:40-43.
- [3] Hao H, Lin H, Chen J B, et al. Enhanced laser self-mixing interferometry based on tunable Fabry-Perot filter [J]. *Optics and Laser Technology*, 2021,135:106666.
- [4] Batignani G, Ferrante C, Scopigno T. Accessing excited state molecular vibrations by femtosecond stimulated Raman spectroscopy [J]. *Journal of Physical Chemistry Letters*, 2020, 11(18): 7805-7813.
- [5] 王子钰,魏景乐,徐文琪,等. 利用飞秒受激拉曼光谱技术研究 Pyranine 分子激发态质子传递过程 [J]. *物理学报*, 2020,69(19):331-338.
- [6] Hoffman D P, Valley D, Ellis S R, et al. Optimally shaped narrowband picosecond pulses for femtosecond stimulated Raman spectroscopy [J]. *Optics Express*, 2013,21(18):21685-21692.
- [7] Lagutchev A, Hambir S A, Dlott D D. Nonresonant background suppression in broadband vibrational sum-frequency generation spectroscopy [J]. *Journal of Physical Chemistry C*, 2007, 111(37): 13645-13647.
- [8] Shen Y R. Surface properties probed by second-harmonic and sum-frequency generation [J]. *Nature*, 1989,337(6207):519-525.
- [9] Buschow K H J, Cahn R W, Flemings M C, et al. *Encyclopedia of materials: Science and technology* [M]. Second Edition. Oxford: Pergamon Press Ltd., 2001:1-7.
- [10] Rangwalla H, Dhinojwala A. Probing hidden polymeric interfaces using IR-visible sum-frequency generation spectroscopy [J]. *Journal of Adhesion*, 2004,80(1/2):37-59.
- [11] Velarde L, Wang H F. Capturing inhomogeneous broadening of the -CN stretch vibration in a Langmuir monolayer with high-resolution spectra and ultrafast vibrational dynamics in sum-frequency generation vibrational spectroscopy (SFG-VS) [J]. *Journal of Chemical Physics*, 2013,139(8): 84204.
- [12] Lee C M, Kafle K, Huang S X, et al. Multimodal broadband vibrational sum frequency generation (MM-BB-V-SFG) spectrometer and microscope [J]. *Journal of Physical Chemistry B*, 2016,120(1):102-116.
- [13] Frenkel A, Lin C. Angle-tuned etalon filters for optical channel selection in high density wavelength division multiplexed systems [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 1989,7(4):615-624.
- [14] Hamm P, Lim M, Hochstrasser R M. Structure of the amide I band of peptides measured by femtosecond nonlinear-infrared spectroscopy [J]. *Journal of Physical Chemistry B*, 1998,102(3):6123-6138.
- [15] Cervetto V, Helbing J, Bredenbeck J, et al. Double-resonance versus pulsed Fourier transform two-dimensional infrared spectroscopy: An experimental and theoretical comparison [J]. *Journal of Chemical Physics*, 2004,121(12):5935-5942.
- [16] Hamm P, Kaindl R A, Stenger J. Noise suppression in femtosecond mid-infrared light sources [J]. *Optics Letters*, 2000,25(24):1798-1800.
- [17] Zhang Y F, Chen X, Zheng B, et al. Structural analysis of transient reaction intermediate in formic acid dehydrogenation catalysis using two-dimensional IR spectroscopy [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2018,115(49):12395-12400.
- [18] Cheam T C, Krimm S. Ab initio force fields of alanine dipeptide in C_s and C₇ conformations [J]. *Journal of Molecular Structure: Theochem*, 1989, 188(1/2):15-43.

(下转 44 页)

Measuring sound velocity in solid medium by ultrasonic pulse method

ZHANG Yuan-wu, YAN Xiang-hong, LIU Yu-jiao, ZHNAG Yi
(College of Science, China University of Petroleum, Qingdao 266580, China)

Abstract: According to the Christofel equation which satisfies the relationship between acoustic velocity and elastic constant, the ultrasonic pulse method was used to measure the acoustic velocity of ultrasonic wave in giant magnetostrictive material. Using electromagnets to stimulate uniform external magnetic field (0~106 kA/m), the dependences of the ultrasonic velocity in three different directions on the external magnetic field were measured, and the elastic constants of the giant magnetostrictive material were calculated for varied external magnetic field. By this extension and upgrade of the traditional solid medium velocity measurement experiment, students' understanding on the principle of ultrasonic velocity measurement were deepen, and the traditional experimental project was given new vitality.

Key words: giant magnetostrictive material; acoustic velocity; anisotropic elastic constant; magnetic field

[责任编辑:郭 伟]

(上接 21 页)

Generation and application of narrow-band laser pulse based on Fabry-Pérot interferometer

YANG Yu-bo, LU Hao-yu, ZHANG Wen-kai
(Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: The main principle of Fabry-Pérot interferometer is multi-beam interference. Due to its resonant cavity structure (F-P cavity), when the frequency of the incident light meets the resonance conditions, the transmission spectrum will have an extremely high peak. The resonant cavity can be used to screening the input frequency and obtain an ideal narrow-band pulse. This article briefly introduced the basic principles of F-P cavity and the basic method of using F-P interferometer to generate narrow-band pulse, and introduced the application of this narrow-band pulse in femtosecond stimulated Raman spectroscopy (FSRS), sum frequency spectroscopy (SFG), two-dimensional infrared spectroscopy (2D-IR) and other state of the art spectroscopy technologies.

Key words: Fabry-Pérot interferometer; narrow-band pulse; femtosecond stimulated Raman spectroscopy; sum frequency spectroscopy; two-dimensional infrared spectroscopy

[责任编辑:任德香]