

文章编号: 0258-7025(2008)07-0976-06

高强度飞秒脉冲单块 BBO 晶体三倍频实验

李 琨^{1,3} 张 彬¹ 刁 煦¹ 李恪宇²

¹ 四川大学电子信息学院, 四川 成都 610064

² 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900; ³ 电子科技大学光电信息学院, 四川 成都 610054

摘要 针对脉冲宽度 100 fs, 带宽 25 nm, 能量 6 mJ 左右的超短脉冲基频光(经过透镜缩束后峰值光强为 200~900 GW/cm²), 采用单块厚度为 1.5 mm 的 BBO 晶体进行了三倍频实验研究。在入射基频光强度约 300 GW/cm² 时, 得到的三倍频转换效率约 0.8%。采用分步傅里叶变换及四阶龙格-库塔算法, 对描述飞秒脉冲单块晶体三倍频的耦合波方程组进行了数值计算。研究表明, 三倍频光主要是由三阶非线性效应产生的; 基频光带宽较大是限制三倍频转换效率的主要因素之一; 对基频光的入射角度及方位角进行优化, 可较好地补偿非线性相位失配, 提高单块晶体三倍频转换效率。

关键词 非线性光学; 三阶非线性效应; 单块晶体三倍频; 飞秒脉冲; 群速度失配

中图分类号 O 437.1 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL20083507.0976

Third Harmonic Generation Experiment of Super Intense Femtosecond Laser with a Single BBO Crystal

Li Kun^{1,3} Zhang Bin¹ Diao Xu¹ Li Keyu²

¹College of Electronic Information, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610064, China

²Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China

³School of Optoelectronic Information,

University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, Sichuan 610054, China

Abstract Third harmonic generation (THG) experiment of super intense femtosecond laser with a single BBO crystal of 1.5 mm was carried out. The pulse width of the input fundamental field is about 100 fs, the bandwidth is about 25 nm, the energy is about 6 mJ, and the maximum intensity is 200~900 GW/cm² after focusing by a lens. The conversion efficiency was 0.8% with the intensity of the input fundamental field of about 300 GW/cm². Based on the numerical techniques such as split-step Fourier transformation and fourth-order Runge-Kutta method, theoretical analysis was presented and the results show that the third harmonic field is mainly produced by the third-order nonlinear effect; the large bandwidth of the fundamental field is one of the chief reasons that limit the conversion efficiency; the nonlinear phase-mismatching and the conversion efficiency could be compensated well after optimizing the incidence angle and the azimuth angle of the fundamental field.

Key words nonlinear optics; third-order nonlinear effect; third harmonic generation with single crystal; femtosecond laser; group-velocity mismatching

1 引 言

短波长、超高强度飞秒脉冲在高能物理、材料科学、非线性光学、惯性约束聚变(ICF)等诸多方面具有非常重要的作用^[1,2]。在惯性约束聚变研究方

面,超短紫外激光的用途主要包括:1) 将紫外光作为探针光使用和超短紫外光测量设备的定标光源^[3]。以探针光为使用目的的超短脉冲倍频,对飞秒激光器的宽带谐波转换能量及转换效率要求不

收稿日期:2007-08-07; 收到修改稿日期:2007-11-19

基金项目:四川省青年科技基金(05ZQ026-013)和超强超短脉冲激光应用基础研究实验室开放课题(CD200508)资助项目。

作者简介:李 琨(1980—),女,四川人,博士研究生,主要从事激光物理和技术方面的研究。E-mail:anryco@sohu.com

导师简介:张 彬(1969—),女,四川人,教授,博士生导师,主要从事高功率激光技术、非线性光学、激光传输变换与光束质量控制等方面的研究。E-mail:zhangbinff@sohu.com

高。2) 将高强度紫外飞秒激光作为惯性约束聚变“快点火”的点火驱动器^[4,5], 快点火要求的倍频光脉冲宽度为皮秒量级。目前, 得到超短紫外激光的主要手段之一还是采用谐波转换技术^[6]。采用单块晶体进行三倍频的主要优点在于方案简单, 同时, 对倍频光引入的脉冲展宽相对较小。因此, 进行高强度飞秒脉冲倍频的研究具有重要的应用价值。然而, 迄今为止, 对单块晶体产生三倍频光的理论^[7]及实验研究^[8]还不多。Banks 等^[8]针对脉宽 350 fs, 能量 ≤ 8 mJ 的钛宝石入射基频光 (峰值光强 ≤ 200 GW/cm²), 采用单块 BBO 及 *d*-LAP 晶体 (厚度 1 mm) 进行了三倍频理论分析及实验, 得到了 6% 左右的转换效率。同时指出, 理论上, 光强大于 500 GW/cm² 时, 采用单块 BBO 晶体的三倍频转换效率可以达到 30%~40%。本文采用一块厚度为 1.5 mm 的 BBO 晶体进行了高强度飞秒脉冲激光的三倍频实验, 同时讨论了晶体的失谐角及方位角、入射基频光初始频率啁啾 (带宽) 及光束锥度等因素对三倍频转换效率的影响, 在此基础上, 提出了单晶体飞秒脉冲三倍频实验的改进措施。

2 实验方案

三倍频实验光路如图 1 所示。采用中国工程物理研究院 SILEX-I 超短脉冲系统^[9]输出的超短脉冲, 脉冲宽度 (FWHM) 100 fs, 能量 6 mJ, 中心波长 810 nm, 带宽 25 nm, 光束口径 2 cm; BBO 晶体由中国科学院福建物构所加工, 口径 20 mm, 厚度 1.5 mm, 晶体按相位匹配角 $\theta_m = 54.04^\circ$ 切割, 光场正入射时的失谐角为 0, 前后表面均镀 800 nm 增透膜; 光谱仪采用 Ocean Optics 公司的 HR4000CG-UV-NIR 型高分辨率光谱仪; 透镜焦距 2 m; 分色镜由中国科学院光电技术研究所加工镀膜。

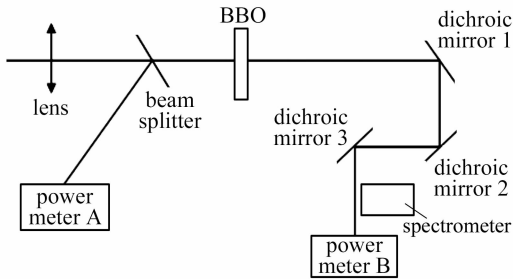


图 1 单块 BBO 晶体三倍频实验光路图

Fig. 1 Scheme of the THG experiment with a single BBO crystal

为了提高 BBO 晶体输入基频光的光强, 同时为

了简化方案, 并且尽量减少透镜玻璃对基频光脉冲产生的展宽, 实验中只采用了一块透镜来压缩基频光的光斑面积。调整晶体与透镜的相对距离, 可以改变光斑的面积从而控制输入基频光的光强。基频光经过劈板 (分束镜) 采样后测量其能量。BBO 晶体安装在三维调节架上。倍频后的光束经过三个分色镜, 将三倍频光分离出来后测量其能量。在移动 BBO 晶体与透镜的相对距离时, 基频光入射到晶体的方位角不变, 采用自准直仪对晶体水平角度及俯仰角度进行监控, 以保证在各个位置处晶体的角度状态保持一致, 从而在同样失谐角及方位角的情况下比较入射基频光强对三倍频转换的影响。

3 实验结果

调整晶体至合适的角度状态, 使三倍频光输出能量较大。入射基频光平均能量为 5.52 mJ, 经过透镜会聚后光束为椭圆形, 入射基频光的光谱和近场分布分别如图 2, 3 所示。此时的峰值光强约为 270 GW/cm², 得到的三倍频光平均能量为 31.3 μ J, 三倍频转换效率为 0.6%。经过 BBO 晶体倍频后, 未经过分色镜的光谱分布情况如图 4(a) 所示, 经过三个分色镜后, 基频光基本上全部被分离, 其光谱分布情况如图 4(b) 所示。

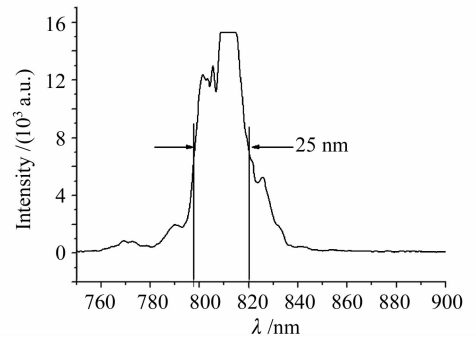


图 2 入射基频光光谱

Fig. 2 Spectrum of the input fundamental field

比较图 2 和图 4(a) 可见, 剩余基频光与入射基频光的光谱差异较大, 剩余基频光在 800 nm 附近出现了严重的畸变, 主要是由于自相位调制及交叉相位调制效应造成的。

实验中, 将基频光对晶体正入射, 并调整晶体旋转角度使三倍频转换效率最大时的位置定为零方位角, 以此为基准记录以晶面法线为轴旋转晶体时的角度作为方位角的改变量。基频光水平及俯仰角度的改变量是在零方位角时, 通过调整晶体在水平及俯仰方向偏离基频光正入射的角度得到的。

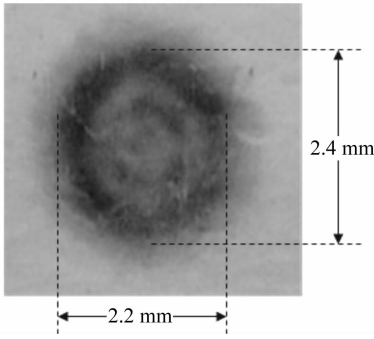


图 3 经过透镜会聚后的近场分布

Fig. 3 Pattern of the focused input fundamental field

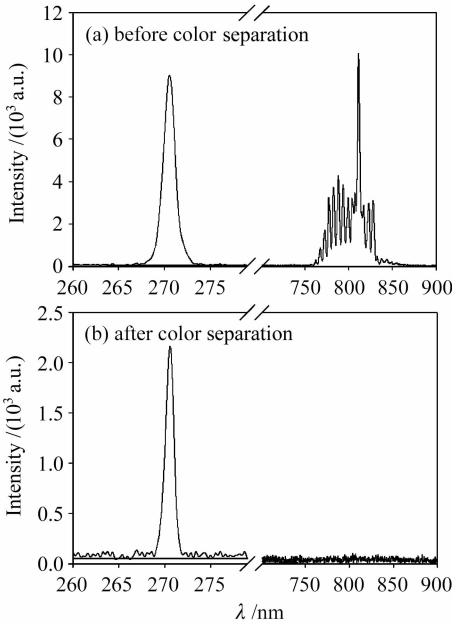


图 4 三倍频后的光谱分布

Fig. 4 Spectrum after THG

图 5~7 分别给出了 BBO 晶体不同俯仰角度、水平角度及方位角的三倍频转换效率。由图可见, BBO 晶体俯仰角度在 $-1.56^\circ \sim 1.06^\circ$ 之间, 单块 BBO 晶体的三倍频转换效率变化不大, 随着晶体俯仰角度的进一步增大, 三倍频转换效率明显降低; BBO 晶体水平角度在 $-11.56^\circ \sim 0^\circ$ 之间, 三倍频转换效率变化不大, 当水平角度小于 -11.56° 或大于 0° 时, 三倍频转换效率明显降低; BBO 晶体的方位角在 $-14^\circ \sim 0^\circ$ 之间的转换效率变化不大, 当方位角小于 -14° 或大于 0° 时, 三倍频转换效率明显降低, 并且, 随着方位角绝对值的增大, 三倍频转换效率进一步减小。

实验中, 通过改变晶体相对于聚焦透镜的位置, 可改变入射基频光的光斑面积, 从而改变入射基频光的峰值光强。图 8 给出了三倍频转换效率随入射基频光光斑面积的变化。取各组基频光能量的平均

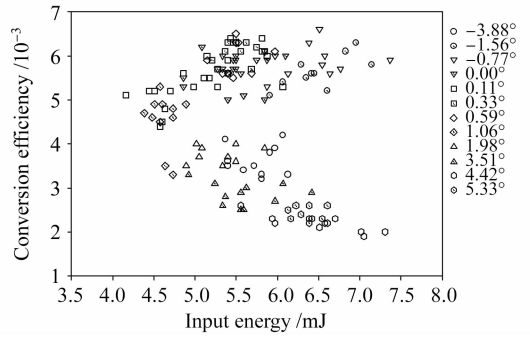


图 5 三倍频转换效率随晶体俯仰角度的变化

Fig. 5 Variation of the THG conversion efficiency with the pitch angle of the crystal

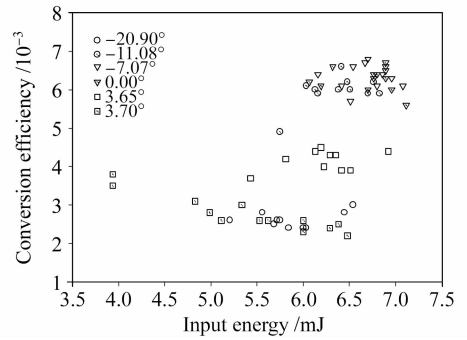


图 6 三倍频转换效率随晶体水平角度的变化

Fig. 6 Variation of the THG conversion efficiency with the horizon angle of the crystal

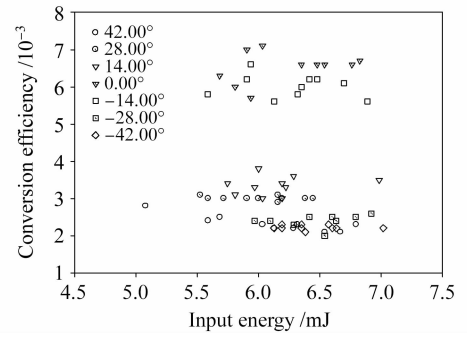


图 7 三倍频转换效率随方位角的变化

Fig. 7 Variation of the THG conversion efficiency with the azimuth angle of the crystal

值估算了峰值光强, 光斑面积分别为 0.1845 cm^2 , 0.1781 cm^2 , 0.1570 cm^2 , 0.0653 cm^2 时的基频光峰值光强分别为 280 GW/cm^2 , 335 GW/cm^2 , 355 GW/cm^2 , 850 GW/cm^2 。由图可知, 当入射基频光强度在 300 GW/cm^2 左右时, 三倍频转换效率随着入射基频光强度的增大而增大。然而, 当入射基频光强度约 850 GW/cm^2 时, 三倍频转换效率却有所下降, 此时, 在晶体后面观察到了类似具有超连续谱的光斑。

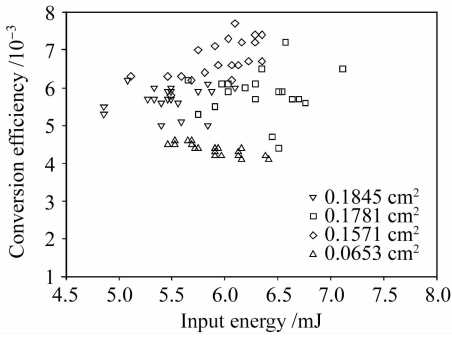


图 8 三倍频转换效率随基频光斑面积的变化

Fig. 8 Variation of the THG conversion efficiency with the dimension of the fundamental field

由图 5~8 可见,单块 BBO 晶体三倍频实验测得的最大三倍频转换效率为 0.7% 左右。此时,三倍频转换效率是经过三个分色镜反射后得到的。考虑到分色镜对三倍频光的反射损耗(反射率 R 约 95%),得到最大三倍频转换效率为 0.8% 左右。同时,由图 4 可见,经过分色镜后,三倍频光的光谱相对强度值有所降低,说明了分色镜对三倍频光的能量有所衰减。

4 结果和分析

采用离散分步傅里叶变换及四阶龙格-库塔算法,结合实验参数,对描述飞秒脉冲单块晶体三倍频的耦合波方程组进行了数值计算^[7,8,10]。理论模型中,全面地考虑了群速度失配、群速度色散、e 光的空间走离、空间衍射、二阶非线性耦合、三阶非线性耦合、自相位调制、交叉相位调制等因素。

基频光的脉冲宽度(FWHM)为 100 fs 没有啁啾时对应的带宽(FWHM)应约为 10 nm,而实验中的基频光带宽有 25 nm(如图 2(a)所示)。由此可见,基频光具有一定的频率啁啾。图 9 给出了不同失谐角情况下,有频率啁啾(带宽 25 nm,实线)及无频率啁啾(带宽 10 nm,点线)的三倍频转换效率理论计算结果。假设入射基频光强为 300 GW/cm²,脉宽 100 fs。计算表明,当入射基频光带宽为 10 nm,晶体失谐角为 0.1° 时,可得到的最大三倍频转换效率约 12%。然而,当基频光带宽为 25 nm 时,失谐角在 -0.1°~0.3° 范围内的三倍频转换效率均不超过 1%。这是由于基频光带宽较大导致了单块 BBO 晶体三倍频的相位失配较大,从而使三倍频转换效率明显降低。为了进一步说明脉冲宽度以及啁啾对三倍频效率的影响,还给出了脉冲宽度为 40 fs(带宽 25 nm,虚线)时三倍频转换效率随失谐角的变化。

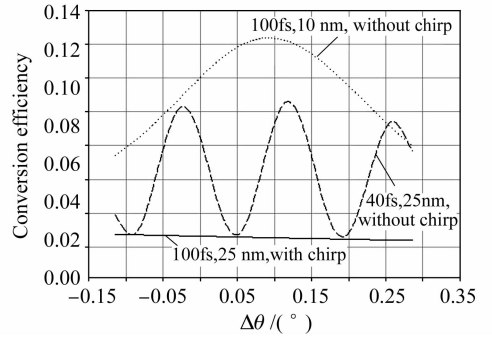
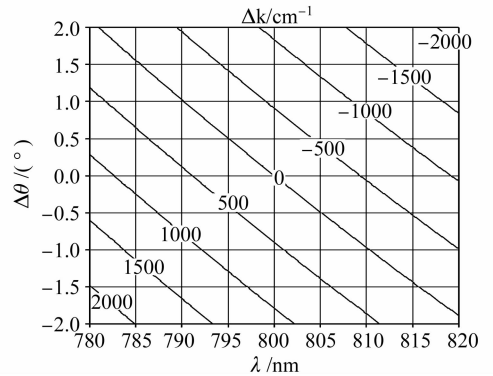
图 9 三倍频转换效率随失谐角 $\Delta\theta$ 的变化

Fig. 9 Variation of the THG conversion efficiency with the detuned angle of the crystal

由图 9 可见,带宽 25 nm 时,有、无啁啾情况下的转换效率差别很大。原因是在带宽一定时,有频率啁啾情况下脉冲的不同时刻点对应于不同的波长,其三倍频相位失配量为

$$\Delta k[\lambda(t), \Delta\theta] = 2\pi n_{3c} \left[\frac{\lambda(t)}{3}, \Delta\theta + \theta_m \right] / \frac{\lambda(t)}{3} - 3 \left[\frac{2\pi n_{1o}}{\lambda(t)} \right].$$

相位失配量 Δk 与入射基频光波长 λ 及失谐角 $\Delta\theta$ 的变化如图 10 所示;而无啁啾时,脉冲的不同时刻点对应的波长包含全部的光谱成分,其相位失配量与带宽及失谐角有关^[11]。因此,后者的转换效率大于前者,并且随失谐角的变化呈现出了明显的波动。

图 10 相位失配量 Δk 随波长 λ , 失谐角 $\Delta\theta$ 的变化Fig. 10 Variation of the phase mismatching Δk with the wavelength λ and the detuned angle $\Delta\theta$

实验中是利用透镜聚焦来获得入射基频光强度的,因此,当透镜焦距 2 m,入射到透镜前的基频光光斑口径为 2 cm 时,聚焦透镜使基频光具有 0.005 rad(0.2865°)的会聚角度。图 11 给出了基频光平行入射(实线)及基频光经过透镜会聚(角度为 0.005 rad,点线)时,理论计算得到的三倍频转换效率随入射基频光强的变化曲线。计算中假设晶体失谐角为 0,方位角为 -15°。

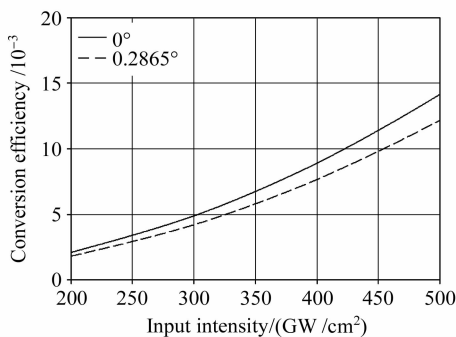


图 11 三倍频转换效率随基频光强的变化

Fig. 11 Variation of the THG conversion efficiency with the intensity of the input fundamental field

由图 11 可见,在不同入射基频光强情况下,基频光为会聚光线时的三倍频转换效率均小于基频光为平行光的情况,且入射基频光强度越高,二者的差异越大。对于晶体失谐角为 0 的情况,当入射基频光强度为 300 GW/cm² 时,理论计算得到的三倍频转换效率约为 0.42%,比实验结果(约 0.67%)略低。这是由于实验过程中对晶体的失谐角(晶体的俯仰角和水平角)进行了调整,初始失谐角的引入在一定程度上可以补偿啁啾及三阶非线性效应引起的相位失配^[10](如图 9 所示),从而适当提高三倍频转换效率。

同时,由图 11 可见,随着基频光强的增大,三倍频转换效率也逐渐增大,当基频光强为 500 GW/cm²,失谐角为 -3° 时,计算得到的三倍频转换效率约为 3.6%。而计算结果也显示,当基频光强为 800 GW/cm² 时,三倍频转换效率更高,这与实验测量结果(约 0.51%)存在较大的差异。主要原因是,在实验过程中,当基频光入射光强增大到 800 GW/cm² 以上时,在晶体后面观察到了类似具有超连续谱的光斑,这可能是由高强度飞秒脉冲与晶体的膜层相互作用所形成的,该过程消耗了入射基频光的能量,从而严重降低了三倍频转换效率。此外,随着入射基频光光强的增加,自相位调制等三阶非线性过程越来越明显,因此,自相位调制等三阶非线性过程的竞争效果也会导致三倍频效率的明显降低。另外,实验后期还观察到晶体前表面对基频光存在明显的反射光,说明晶体表面镀膜性能发生了变化,造成对入射基频光的反射增大,减小入射基频光的能量,从而降低三倍频光转换效率。

为了说明单块 BBO 晶体中级联的二阶非线性效应对最终产生的三倍频光的贡献,图 12 给出了同时考虑二阶、三阶非线性效应(实线)及只考虑二阶

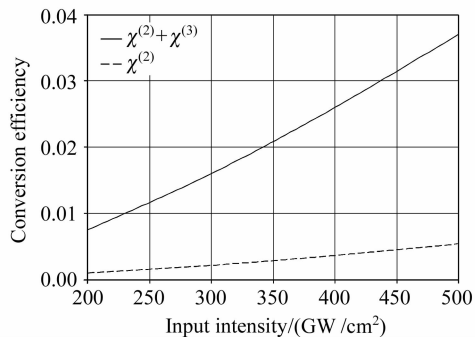


图 12 三倍频转换效率随入射基频光强的变化

Fig. 12 Variation of the THG conversion efficiency with the intensity of the input fundamental field

非线性效应(虚线)时,三倍频转换效率随入射基频光强的变化曲线。

由图 12 可见,只考虑级联的二阶非线性效应时的三倍频转换效率是考虑二阶、三阶非线性效应时的 1/10。由此可知,单块 BBO 晶体三倍频过程中,级联的二阶非线性效应对产生的三倍频光贡献较小。例如,当入射基频光强度为 300 GW/cm² 时,理论计算只考虑级联二阶非线性效应时得到的三倍频光转换效率仅为 0.15%,比实验测量结果还要低很多。另一方面,对于级联的二阶非线性效应中的二倍频及和频过程,其相位失配均很大,假如三倍频光主要是由级联的二阶非线性效应产生的,则由于和频过程中二倍频光转换不充分,输出的光谱中应该存在一定比例的二倍频光成分(至少与产生的三倍频光可比拟)。然而,由实验测得的光谱曲线可知,经过 BBO 晶体转换后出射的光场中,几乎没有二倍频光成分,由此也说明了通过二阶非线性效应级联过程产生三倍频光的成分很少,实验中测得的三倍频光主要是通过三阶非线性效应产生的。

5 结 论

针对脉冲宽度 100 fs,带宽 25 nm,能量为 6 mJ 左右的超短脉冲基频光(经过透镜缩束后峰值光强为 200~900 GW/cm²),采用单块 BBO 晶体进行了三倍频实验研究。由于基频光带宽较宽(25 nm),在入射基频光强度约 300 GW/cm² 时,实验得到的三倍频光转换效率约 0.8%。为了提高单块 BBO 晶体的三倍频转换效率,必须采取进一步的改进措施。具体包括:1) 提高晶体调整精度,对晶体失谐角、方位角进行准确定位;2) 利用缩束光学系统代替透镜聚焦以获得需要的入射基频光强度,从而使入射基频光以平行方式入射;3) 适当减小基频光带宽,则

在同样的入射基频光光强条件下,三倍频转换效率可得到明显提高;4) 准确地确定晶体 e 光及 o 光的方向,提高晶体定位精度;5) 提高晶体加工及光学元件的镀膜质量,避免由于晶体加工及镀膜质量的原因消耗基频光及三倍频光的能量。

参 考 文 献

- Zhang Jiatai, He Bin, He Xiantu *et al.*. Study on the mechanism of the fast ignition in laser fusion [J]. *Acta Physica Sinica*, 2001, **50**(5):921~925
张家泰,何 斌,贺贤士等. 激光聚变快点火机理研究[J]. *物理学报*, 2001, **50**(5):921~925
- Liang Min, Li Wenxue, Hu Wanyue *et al.*. Studies on 5 TW/40fs table-top Ti:sapphire laser system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(1):81~85
梁 敏,李文雪,胡婉约等. 5 TW/40 fs 级台式钛宝石激光系统研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(1):81~85
- Xiang Yong, Yuan Xiaodong, Xu Bin *et al.*. Second harmonic probe system for laser-plasma diagnostics experiment [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2000, **12**(Suppl.):201~204
向 勇,袁晓东,徐 冰等. 用于激光等离子体诊断实验的二倍频探针光系统[J]. *强激光与粒子束*, 2000, **12**(增刊):201~204
- Chiyou Yamanaka. The prospect of laser fusion in 21st century [C]. *SPIE*, 2001, **4424**:51~58

- K. A. Tanaka, R. Kodama, K. Mima *et al.*. Basic and integrated studies for fast ignition [J]. *Physics of Plasmas*, 2003, **10**(5):1925~1930
- V. Krylov, A. Kalintsev, A. Rebane *et al.*. Second, third and fourth harmonic generation of amplified femtosecond Ti:sapphire laser pulses [C]. *SPIE*, 1996, **2701**:24~30
- T. Zhang, K. Yamakawa. Numerical analysis of type I third-harmonic generation through third-order and cascaded second-order nonlinear optical processes [J]. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2000, **39**(1):91~95
- Paul S. Banks, Michael D. Feit, Michael D. Perry. High-intensity third-harmonic generation [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2002, **19**(1):102~118
- Huang Xiaojun, Peng Hansheng, Wei Xiaofeng *et al.*. Ultra-short ultra-intense Ti:sapphire laser facility with peak power of hundred-terawatt-level [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2005, **17**(11):1685~1688
黄小军,彭翰生,魏晓峰等. 100 TW 级超短超强钛宝石激光装置[J]. *强激光与粒子束*, 2005, **17**(11):1685~1688
- Li Kun, Zhang Bin, Li Keyu *et al.*. Third harmonic generation of super intense femtosecond laser pulse [J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(11):1506~1511
李 琨,张 彬,李格宇等. 超高强度飞秒脉冲的三次谐波转换[J]. *中国激光*, 2006, **33**(11):1506~1511
- D. M. Pennington, M. A. Henesian, D. Milam *et al.*. Efficient broadband third harmonic frequency conversion via angular dispersion [C]. *SPIE*, 1997, **2633**:645~654

· 广 告 ·



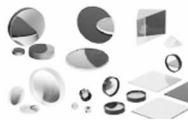
上海瞬渺光电技术有限公司

上海瞬渺光电技术有限公司 主要从事国际品牌先进光纤、激光、光电子、光机械、光学仪器和光纤通讯产品的设计、引进、咨询、代理和经销。

主要代理产品有:

» 美国 Edmund Optics 公司光学产品:

1. 高精度的光学透镜、棱镜;
2. 光学机械装置;
3. 光电子装置;
4. 计算机视觉系统;
5. 高精度的 CCD 光学元件;
6. 平面、球面镜,光学光圈等。



» 白俄罗斯 ELECTROOPTIC 公司红外激光观察镜和红外相机:

用于准直红外激光输出光束和调整光学元件的理想工具,该产品性能指标优于国外其他同类产品。



» 美国 Terahertz Technologies Inc 公司

专业生产激光测试及光通讯测试仪表,主要产品 C-995 速度可调的微处理光学斩波器、LTX-5515 信号收发器、TIA-950 光电转化模块。

» 美国 Thorlabs 公司

1. 光斑测量仪;
2. F-P 扫描干涉仪;
3. CCD 摄像仪、光电探测器;
4. 光功率计/能量计;
5. 偏振态测量仪;
6. 半导体激光器及电流源、温控器;
7. 光电探测器;
8. 激光光源和光斩波器;
9. 光学调制架、光学微机械、光学测试元件;
10. 红外显示卡、激光防护眼镜、静电防护装置及其相关组件等。



» 其他代理产品公司:

Crystal Fiber 公司, 主要产品: 保偏光子晶体光纤;
MPB 公司, 主要产品: 拉曼放大器, EDFA 光纤激光器等;
Fibercore 公司, 主要产品: 光纤陀螺领域保偏光纤, 各类掺铒光纤产品;
Coractive 公司, 主要产品: 衰减光纤, 红外光纤, 掺铒光纤, 双包层光纤, 紫外光纤;
INO 公司, 主要产品: 双包层光纤, FBG, 光纤激光器, 放大器, PPLN 晶体等;
DenseLight 公司, 主要产品: 超辐射二极管, 窄带宽激光器, GPON transceiver;
Superlum Diodes 公司, 主要产品: 高精度 SLD, 波长范围为 650~1620 nm, 有多种封装形式。

地址: 上海市春申路 3758 弄 2 号 404 室 (201100)
电话: 021-64600964/54157625 传真: 021-64600974
Web: www.rayscience.com Email: saleschina@rayscience.cn