

皮秒抽运的参量荧光的时间相干性

周南¹, 李大为², 崔勇¹, 徐光², 王韬¹

¹中国工程物理研究院上海激光等离子体研究所, 上海 201800;

²中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理联合实验室, 上海 201800

摘要 在理论和实验上,分析了皮秒激光脉冲抽运所产生的参量荧光的时间相干特性。通过引入二阶复相干度,理论研究了在信号光与闲频光群速度走离存在的条件下,抽运功率和抽运脉宽对参量荧光时间相干性的影响。计算结果表明适当的抽运功率和较短的抽运脉宽是提升参量荧光时间相干性的重要条件,而过高的抽运功率或者较宽的抽运脉宽则会降低参量荧光的时间相干性。利用周期极化铌酸锂晶体,在实验上对理论结果进行了初步的实验验证。

关键词 非线性光学; 参量荧光; 相干性; 光参量产生

中图分类号 O437.4

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.0708001

Temporal Coherence of Parametric Fluorescence Pumped by Picosecond Pulses

Zhou Nan¹, Li Dawei², Cui Yong¹, Xu Guang², Wang Tao¹

¹Shanghai Institute of Laser Plasma China Academy of Engineering Physics, Shanghai 201800, China;

²National Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract Both numerically and experimentally, the temporal coherence of parametric fluorescence pumped by picosecond laser is studied. The influence of pump power and pump pulse width on temporal coherence of parametric fluorescence is investigated using the two-time mutual coherence function in the presence of walk-off between the signal and idle. The numerical simulations show that a suitable pump power and a relatively short pump pulse width are very important to increase the temporal coherence of optical parametric fluorescence while a too high pump power or a relatively long pump pulse width can reduce the temporal coherence. Using the periodically poled lithium niobate crystal, the theoretical result is preliminarily proved experimentally.

Key words nonlinear optics; parametric fluorescence; coherence; optical parametric generation

OCIS codes 190.4410; 030.1640

1 引言

光学参量技术是获得新的激光工作波长的重要方法之一。其中,参量荧光可以通过简单的光参量过程(OPG)产生,并且由于其具有结构简单、调节灵活、性价比高的特点而被广泛研究^[1-2],在时间分辨光谱学^[3]、高能量密度物理(HEDP)、光学相干层析(OCT)^[4]、光通信^[5]等领域有广泛的应用。参量荧光是指在合适的非线性晶体和抽运光强作用下,

符合能量及动量守恒的量子噪声经参量放大而得到的荧光^[6]。参量荧光由于其产生机制,通常被认为带有显著的噪声特性,具有较差的时间相干性^[7]。例如,在光参量放大(OPA)中,通常需要通过各种手段来抑制参量荧光,这是因为参量荧光不仅限制了输出短脉冲激光的信噪比,而且降低了参量放大过程的转换效率。但是随着研究的深入,参量荧光较差的时间相干性反而成为一种优势,为其带来了新的应用前景。例如,较低的时间相干性可以为高

收稿日期: 2018-01-12; **收到修改稿日期:** 2018-02-15

作者简介: 周南(1993—),男,硕士研究生,主要从事超短脉冲激光技术方面的研究。E-mail: zn0321@soxmail.com

导师简介: 王韬(1969—),男,博士,副研究员,硕士生导师,主要从事超短脉冲激光技术方面的研究。

E-mail: twang@siom.ac.cn(通信联系人)

能物理实验提供低相干度种子源,从而降低激光等离子体不稳定性(LPI)^[8-9]。在光学相干层析成像中,低相干光更低的相干距离可以获得更高的轴向分辨率^[10]。

目前,对参量荧光的研究主要分为两类,一类是将参量荧光作为 OPA 中的噪声,研究抑制参量荧光的方法,提升 OPA 的信噪比和转换效率;另一类是将参量荧光作为光源进行研究,这类研究主要集中在提高参量荧光的功率和转换效率,获得更宽的波长调谐范围以及噪声特性等方面。相比之下,影响光源应用的重要指标之一,参量荧光的相干性及其影响因素尚未得到充分研究。不同于自发辐射的传统荧光,参量荧光由于参量放大过程的特殊性,被研究发现在适当条件下可以具有很高的相干性。在 2001 年,Antonio 等^[11-12]通过理论研究指出,走离作用(信号光与闲频光的群速度差)是参量荧光由非相干转变为相干的关键因素。然而,他们的研究缺乏实验验证的内容,而且参量荧光过程的其他物理参数,例如抽运功率、抽运脉宽等因素对参量荧光相干性的影响,尚未得到理论分析及实验验证。

在此基础上,本文就抽运功率和抽运脉宽对参量荧光相干性的影响进行了理论和实验研究,探究参量荧光相干性的调控方法,为建立一种时间相干性可控的光源提供依据。在理论研究中使用三波耦合方程来描述参量过程,并引入二阶复相干度(MCF)^[13-14]来描述参量荧光的相干性,研究了不同抽运功率和不同抽运脉宽条件下,参量荧光相干性的变化情况。通过频率分辨光学快门(FROG)设备对不同抽运功率下的参量荧光进行实验研究,成功得到了理论预测的相干性较高的参量荧光,并通过增加抽运功率的方法成功地降低了参量荧光的相干性。为了克服 10 ps 抽运条件下的参量荧光脉宽过长而导致现有的 FROG 设备无法测量的问题,提出了强度自相关的方法来定性测量参量荧光的相干性变化情况,并比较了不同抽运脉宽条件下的荧光相干性变化情况。

2 数值模型

2.1 耦合波方程

参量荧光的产生过程可以采用经典三波耦合方程组进行描述,假设光场变化满足慢变振幅条件,考虑参量过程中无规噪声的影响,三波耦合微分方程组表述为^[11-12]

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} + \delta_1 \frac{\partial A_1}{\partial t_3} + \frac{j}{2} \beta_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial t_3^2} = \gamma_1 A_3 A_2^* \exp(j\Delta k z) + \epsilon_1 \xi_1 \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} + \delta_2 \frac{\partial A_2}{\partial t_3} + \frac{j}{2} \beta_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial t_3^2} = \gamma_2 A_3 A_1^* \exp(j\Delta k z) + \epsilon_2 \xi_2 \\ \frac{\partial A_3}{\partial z} + \frac{j}{2} \beta_3 \frac{\partial^2 A_3}{\partial t_3^2} = \gamma_3 A_1 A_2 \exp(-j\Delta k z) + \epsilon_3 \xi_3 \end{cases} \quad (1)$$

式中 A_1 、 A_2 、 A_3 分别代表参量过程中信号光、闲频光和抽运光的复振幅。以抽运光作为参考系,走离系数 $\delta_i = \left(\frac{1}{v_i} - \frac{1}{v_3} \right)$ 为相对于抽运光的时间走离量, v_i 是频率为 ω_i 的光波的群速度, β_i 是群速度色散。 t_3 是抽运光参考系中的时间 $t_3 = t - \frac{z}{v_3}$ 。非线性系数 $\gamma_i = j \frac{\omega_i d^{\text{eff}}}{n_i c}$, n_i 和 c 分别为折射率和真空中光速, Δk 代表相位失配量。 ξ_i 是归一化的高斯白噪声^[15-16]。 ϵ_i 是噪声强度。计算模型忽略了吸收和高阶色散影响。

2.2 时间相干性理论

仿真计算中,采用 MCF^[10] 及强度自相关来评价参量荧光的相干度,有效地避免了信号光脉冲宽度对相干性的影响。

MCF 的具体公式为

$$\Gamma(\bar{t}, \Delta t) = \langle E^*(\bar{t} - \Delta t/2) E(\bar{t} + \Delta t/2) \rangle, \quad (2)$$

式中 $\bar{t} = (t_1 + t_2)/2$, $\Delta t = t_2 - t_1$, $I(t) = \Gamma(\bar{t}, \Delta t = 0)$, 尖括号代表取平均值(采用计算 100 次取平均的方法)。总的平均复相干度可以由下式得到。

$$\bar{\gamma}^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} |\Gamma(\bar{t}, \Delta t)|^2 d\bar{t} d\Delta t}{\left[\int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt \right]^2}. \quad (3)$$

由于所使用的 FROG 设备测量范围是 40 ~ 400 fs,因此无法测量 10 ps 抽运条件下的参量荧光。为了解决这一问题,使用仿真计算结合自相关测量的方法来研究荧光相干性的变化情况。强度自相关公式为

$$A(\tau) = \left\langle \int_{-\infty}^{\infty} I(t) I(t - \tau) dt \right\rangle, \quad (4)$$

式中 I 为光强, τ 为时延,尖括号代表取平均(计算 100 次取平均)。

3 数值模拟

3.1 抽运光强对参量荧光相干性的影响

图 1 为不同抽运功率下的参量荧光变化情况,它们的相干特性如图 2 表示。仿真条件: MgO 摩尔浓

度为 5% 的 PPCLN 晶体, 晶体周期为 $30.2 \mu\text{m}$, d_{33} 为 $25.7 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$, 晶体长度为 10 mm 。抽运光波长为 1040 nm , 脉宽为 500 fs , 信号光波长为 1550 nm , 工作温度为 $25 \text{ }^\circ\text{C}$ 。抽运光直径为 $380 \mu\text{m}$, 重复频率为

50 kHz , 抽运功率分别为 $300, 360, 420 \text{ mW}$, 噪声的方差 $\sigma = 10^{-13}$ 。根据计算得到三波的群速度分别为 $v_1 = 1.3797 \times 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, $v_2 = 1.3670 \times 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, $v_3 = 1.3601 \times 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

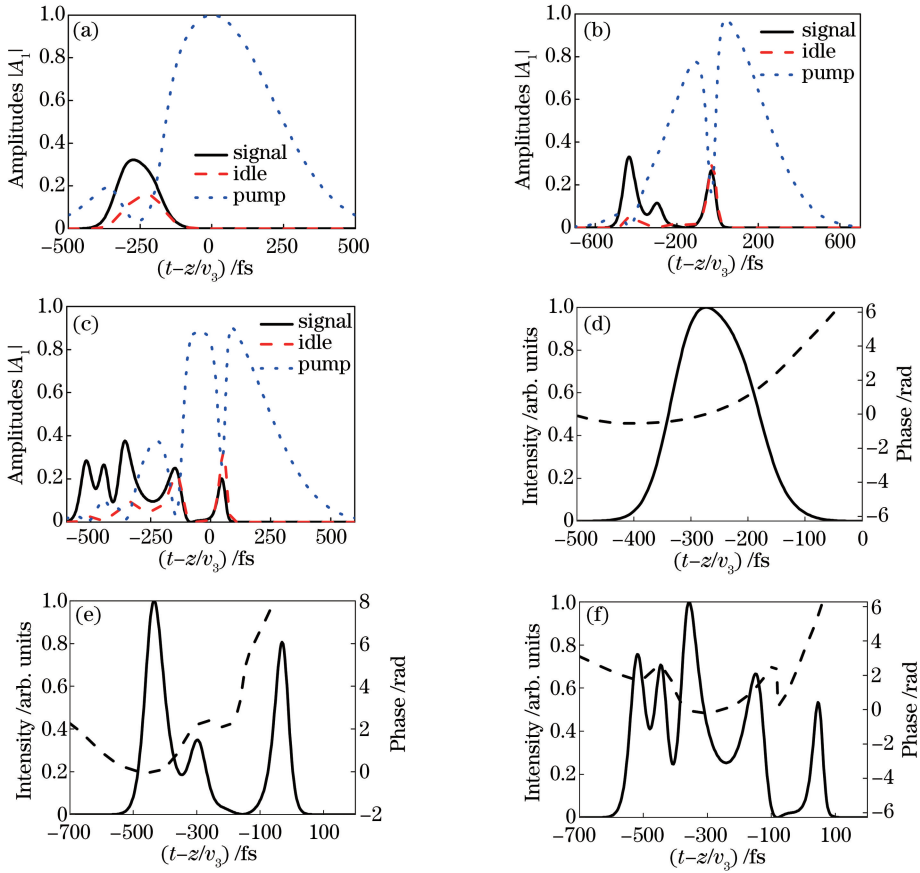


图 1 不同抽运功率参量荧光的数值结果。(a)~(c)三波振幅包络;(d)~(f)信号光光强与相位。

其中抽运功率为(a)(d) 300 mW, (b)(e) 360 mW, (c)(f) 420 mW

Fig. 1 Numerical results of parametric fluorescence using different pump power.

(a)-(c) evolution of the three interacting envelopes; (d)-(f) temporal shape and phase of signal for pump power of (a)(d) 300 mW, (b)(e) 360 mW, (c)(f) 420 mW

由图 1 可知, 在抽运功率为 300 mW 时, 参量荧光的复振幅和相位都是规则的。而随着抽运功率增大, 参量过程进入饱和阶段, 进而导致参量荧光呈现出无序的特性。为了得到抽运功率对参量荧光相干性的影响, 使用 MCF 及 (3) 式中的平均复相干度 $\bar{\gamma}$ 来描述相干性, 如图 2(a)~(c) 所示。当抽运功率为 300 mW 时, 图 2(a) 中的参量荧光表现出很好的相干性。当抽运功率增加至 360 mW 和 420 mW 时, 由图 2(b) 和 (c) 计算得到的复相干度 $\bar{\gamma}$ 也逐渐减小, 说明参量过程进入饱和区, 会导致参量荧光的相干性减小。

强度自相关是短脉冲测量的常用方法, 其形状的变化可以反映脉冲强度包络的复杂度(使用啁啾

敏感度低的双光子吸收(TPA)自相关仪), 利用这一特性, 结合理论研究中参量荧光相干性变化的规律, 可以利用强度自相关来定性测量参量荧光相干性的变化情况。当脉冲具有规则的强度包络的时候, 强度自相关的脉宽反映了脉冲的脉宽情况, 如图 2(d) 所示; 而当脉冲强度包络的复杂度增加, 强度自相关的形状会变成底座上一个细窄的波峰的形状^[17], 如图 2(e) 和 (f) 所示。由图 1 和图 2 中对参量荧光相干性的研究可知, 强度包络复杂的参量荧光, 其相位也是混乱的, 因此具有很差的相干性。所以, 可以利用强度自相关来测量参量荧光强度包络的有序度, 进而间接测量参量荧光相干性的变化情况。

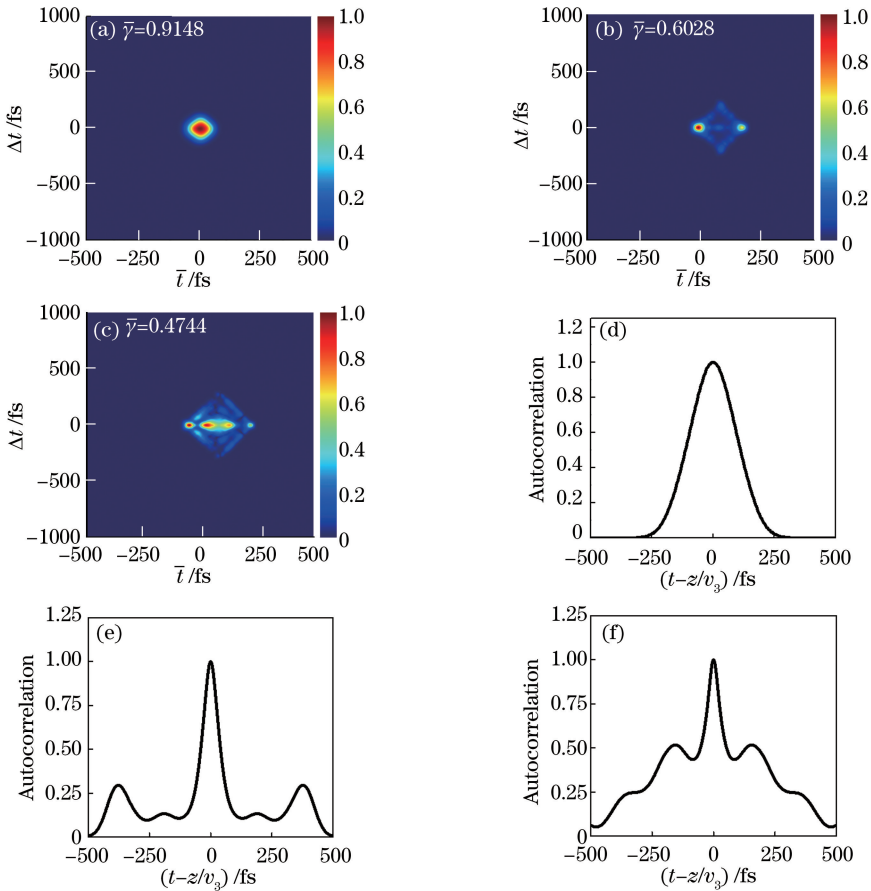


图 2 参量荧光相干特性。(a)~(c)归一化 MCF;(d)~(f)强度自相关,其中抽运功率为 (a)(d) 300 mW,(b)(e) 360 mW,(c)(f) 420 mW

Fig. 2 Coherence properties of parametric fluorescence with pump power the same as in Fig.1. (a)-(c) normalized MCF; (d)-(f) intensity autocorrelation trace for pump power of (a)(d) 300 mW, (b)(e) 360 mW, (c)(f) 420 mW

3.2 抽运光脉宽对参量荧光相干性的影响

为了对比不同脉宽条件下的参量荧光情况,仿真了 10 ps 脉宽抽运条件下的参量荧光过程,并与图 1 中 0.5 ps 脉宽结果进行对比。图 2 为 10 ps (0.5 ps 展宽而成)抽运条件下的参量荧光结果。由于抽运展宽会导致光强减弱,因此调节了离焦量使抽运光直径变为 100 μm ,并调节抽运功率为 290 mW,保证参量荧光具有一定的功率,并防止进入饱和区,其他参数与图 1(a)和(b)相同。

由图 3(a)可知,参量过程工作在非饱和区,所以饱和对相干性的影响可以忽略不计。综合对比图 2 和图 3 可知,当抽运脉宽增加时,参量荧光的相干度从 0.5 ps 抽运时的参量荧光的相干度从 0.5 ps 泵浦时的 $=0.91$ 减少到 10 ps 抽运时的 $=0.27$ 。这是因为参量荧光的相干性来源于信号光与闲频光间较大的群速度差带来的走离作用^[11],而抽运脉宽的增大会相对地减小走离作用的效果,导致参量荧光保留了较多量子噪声的特征,具有较低的相干度。因

此,较短的抽运脉宽有助于提升走离作用的效果,提升参量荧光的相干性。

4 实验设置及结果

4.1 实验装置

实验装置如图 4 所示。抽运源采用波长为 1040 nm 的商业化激光器,重复频率为 50 kHz,最大输出功率约为 1.5 W。其脉宽为 490 fs,谱宽为 3.92 nm。非线性晶体尺寸为 4 mm 宽、3 mm 厚、10 mm 长,MgO 摩尔浓度为 5% 的周期极化铌酸锂 (PPLN) 晶体,其极化周期为 30.2 μm ,工作温度为 20 $^{\circ}\text{C}$ 。波片用来调节入射光偏振。透镜用于聚焦抽运光并重新准直参量荧光。抽运光和闲频光分别通过滤波片和反射镜与信号光分离。抽运光通过透镜 ($f = 100 \text{ mm}$) 聚焦至非线性晶体,晶体位于焦点后,其中心的抽运光束腰直径为 380 μm 。

4.2 抽运功率对参量荧光相干性的影响

通过图 4 的装置,实验研究了抽运脉宽对参量

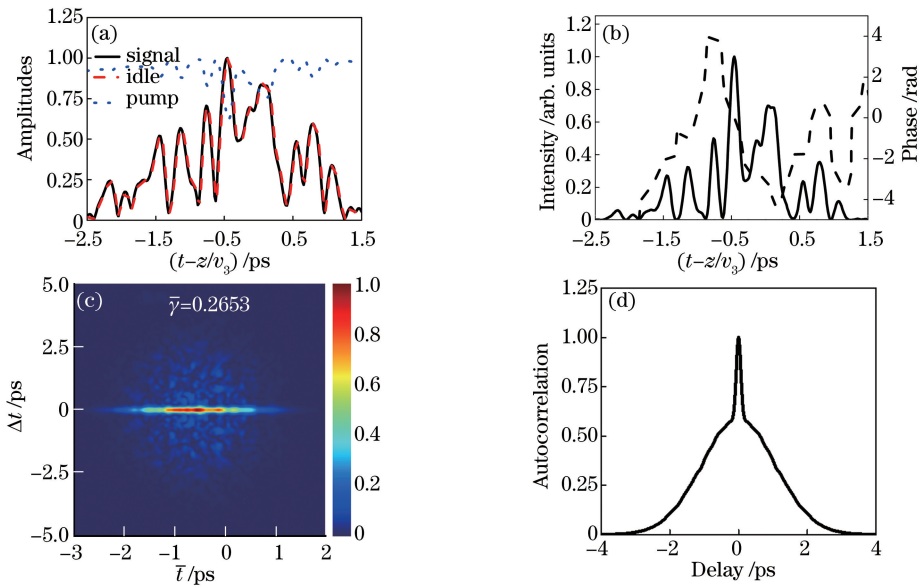


图 3 脉宽 10 ps 抽运条件下的参量荧光。(a)三波光强包络线;(b)信号光光强以及相位;(c)归一化 MCF;(d)自相关曲线
Fig. 3 Parametric fluorescence for 10 ps pump pulse width. (a) Three wave amplitude envelopes; (b) signal light intensity and phase; (c) normalized MCF; (d) autocorrelation trace

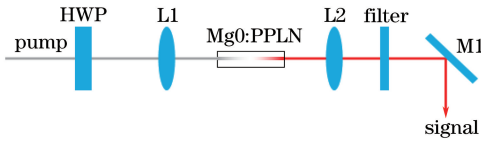


图 4 PPLN 参量荧光实验装置图

Fig. 4 Experimental setup of PPLN parametric fluorescence
荧光相干性的影响。采用 Swamp Optics 公司的 15-40-USB 型 FROG 进行测量,图 5 为 320 mW 和

625 mW 抽运功率下,参量荧光的 FROG 测量结果 (中心波长由扫描光谱仪确定)。由图 5(a)和(b)可知,当抽运功率为 320 mW 时,测量结果与图 1(a)的理论结果十分相似,无论在时域还是频域,参量荧光的强度和相位均是规则且有序的,证明得到的参量荧光相干性较高。当抽运功率增加到 625 mW,参量荧光出现了与图 1(b)相似的情况,其强度和相位变得混乱,说明其相干性变差,如图 5(c)和(d)所

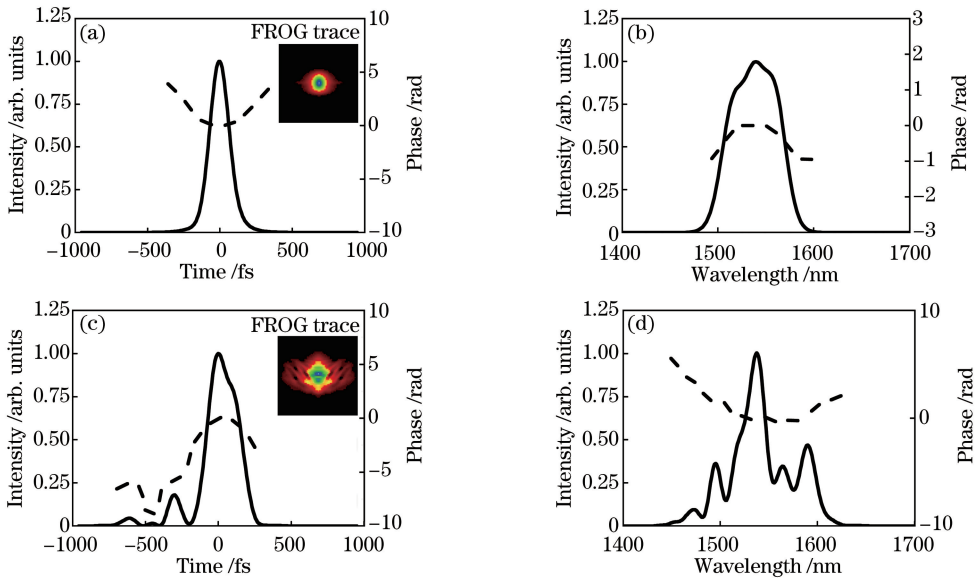


图 5 不同抽运功率下参量荧光的 FROG 测量结果。(a)(c)时域光强与相位;(b)(d)频域光强与相位。
其中抽运功率为(a)(b) 320 mW,(c)(d) 625 mW

Fig. 5 Characteristics of parametric fluorescence for different pump powers using FROG. (a)(c) Temporal domain intensity and phase; (b)(d) frequency domain intensity and phase for pump power of (a)(b) 300 mW, (c)(d) 625 mW

示。同时,参量荧光相干性的降低也导致了 FROG 的测量误差从 320 mW 抽运时的 1.5% 增加到 625 mW 抽运时的 5.88%。由图 5 中两种抽运功率下参量荧光的对比结果可知,在合适的抽运功率作用下,可以得到相干度较高的参量荧光,而过高的抽运功率则会导致参量荧光的相干性降低。

4.3 抽运脉宽对参量荧光相干性的影响

为了验证抽运脉宽对参量荧光相干性的影

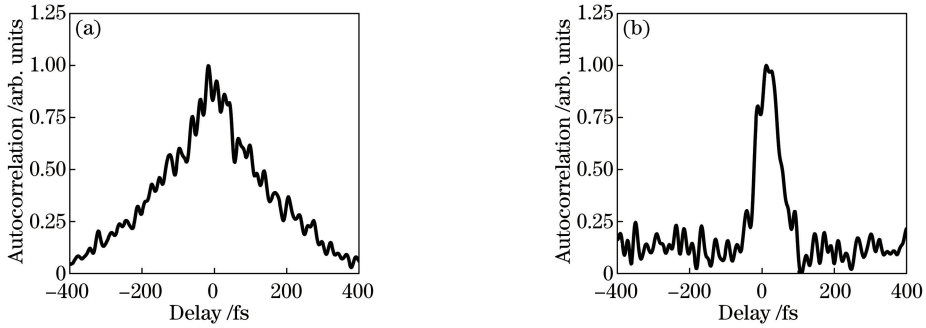


图 6 强度自相关。(a)脉宽 0.5 ps;(b)脉宽 10 ps

Fig. 6 Intensity autocorrelations for pump pulse width of (a) 0.5 ps and (b) 10 ps

由图 6(a)可知,0.5 ps 抽运条件下的参量荧光脉宽为 160 fs,符合 FROG 数据以及图 1(a)中理论计算的结果。在 10 ps 抽运条件下,图 6(b)中的测量结果为 55 fs。实验得到的远短于真实脉宽的强度自相关数据,证明了 10 ps 抽运条件下荧光性质与图 3(d)中的理论结果相似,拥有较低的相干性。对抽运脉宽过大会导致参量荧光相干性降低的理论结果,进行了初步的实验验证。

5 结 论

在理论上研究了抽运光强和抽运脉宽对参量荧光相干性的影响,并进行了初步的实验验证。研究结果表明,通过设计合适的参数,确实可以得到相干度较高的参量荧光,但是过高的抽运光功率会使参量过程进入饱和区,导致荧光相干性变弱;过大的抽运光脉宽会削弱剥离作用的影响,降低荧光的相干性。后续的研究工作中,将进一步研究不同群速度配置,不同相位匹配方式以及温度等因素对参量荧光相干性的影响,进一步完善实验验证,并尝试使用频域复相干度等更为直接的方法评估相干性^[18-19]。该研究成果为得到一种相干性可调、能量高、波长可调谐激光源提供了理论及实验依据,可以更好地满足高能物理实验等应用领域对光源的需求。

参 考 文 献

[1] Manzoni C, Cirimi G, Brida D, *et al.* Optical-

响,通过光栅对将抽运光展宽到 10 ps,根据理论计算的结果,调节合适的离焦距离使抽运光直径为 100 μm ,并且调节抽运功率至 290 mW,得到脉宽为 10 ps 抽运条件下的参量荧光。使用 Avesta 公司的 AA-20DD-30 ps 型双光子吸收自相关仪(不受啁啾影响)分别测量脉宽为 0.5 ps 和 10 ps 抽运条件下,参量荧光的强度自相关,结果如图 6 所示。

parametric-generation process driven by femtosecond pulses: timing and carrier-envelope phase properties [J]. *Physical Review A*, 2009, 79(3): 033818.

[2] Linnenbank H, Linden S. High repetition rate femtosecond double pass optical parametric generator with more than 2 W tunable output in the NIR [J]. *Optics Express*, 2014, 22(15): 18072-18077.

[3] Macklin J J, Trautman J K, Harris T D, *et al.* Imaging and time-resolved spectroscopy of single molecules at an interface [J]. *Science*, 1996, 272 (5259): 255-258.

[4] Teich M C, Saleh B E A, Wong F N C, *et al.* Variations on the theme of quantum optical coherence tomography: a review [J]. *Quantum Information Processing*, 2012, 11(4): 903-923.

[5] Wada O. Femtosecond all-optical devices for ultrafast communication and signal processing [J]. *New Journal of Physics*, 2004, 6(1): 183.

[6] Harris S E, Oshman M K, Byer R L. Observation of tunable optical parametric fluorescence [J]. *Physical Review Letters*, 1967, 18(18): 732-734.

[7] Le Gouët J, Venkatraman D, Wong F N C, *et al.* Classical low-coherence interferometry based on broadband parametric fluorescence and amplification [J]. *Optics Express*, 2009, 17(20): 17874-17887.

[8] Montgomery D S. Two decades of progress in understanding and control of laser plasma instabilities in indirect drive inertial fusion [J]. *Physics of Plasmas*, 2016, 23(5): 055601.

[9] Pétrélis F, Aumaitre S, Fauve S. Effect of phase

- noise on parametric instabilities[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(7): 070603.
- [10] Wang Y, Lim H, Wise F, *et al.* Low-noise broadband light generation from optical fibers for use in high-resolution optical coherence tomography[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2005, 22(8): 1492-1499.
- [11] Picozzi A, Haelterman M. Influence of walk-off, dispersion, and diffraction on the coherence of parametric fluorescence [J]. *Physical Review E Statistical Nonlinear & Soft Matter Physics*, 2001, 63(5): 056611.
- [12] Picozzi A, Montes C, Haelterman M. Coherence properties of the parametric three-wave interaction driven from an incoherent pump[J]. *Physical Review E Statistical Nonlinear & Soft Matter Physics*, 2002, 66(5): 056605.
- [13] Genty G, Surakka M, Turunen J, *et al.* Complete characterization of supercontinuum coherence [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 28(9): 2301-2309.
- [14] Dutta R, Turunen J, Genty G, *et al.* Temporal coherence characterization of supercontinuum pulse trains using Michelson's interferometer[J]. *Applied Optics*, 2016, 55(12): B72-B77.
- [15] Fan J, Chen W, Gu C, *et al.* Noise characteristics of high power fiber-laser pumped femtosecond optical parametric generation[J]. *Optics Express*, 2017, 25(20): 24594-24603.
- [16] Paschotta R. Noise of mode-locked lasers (Part I): numerical model[J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2004, 79(2): 153-162.
- [17] Trebino R, Bowlan P, Gabolde P, *et al.* Simple devices for measuring complex ultrashort pulses[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2009, 3(3): 314-342.
- [18] Dudley J M, Coen S. Numerical simulations and coherence properties of supercontinuum generation in photonic crystal and tapered optical fibers[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2002, 8(3): 651-659.
- [19] Gu X, Kimmel M, Shreenath A P, *et al.* Experimental studies of the coherence of microstructure-fiber supercontinuum [J]. *Optics Express*, 2003, 11(21): 2697-2703.