

文章编号: 0253-2239(2008)09-1761-06

BBO 晶体中级联非线性效应的实验研究

王燕玲 李 贤 周绪桂 吴 洪 徐世祥 丁良恩

(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)

摘要 采用 800 nm 和 400 nm 两束飞秒激光脉冲在 BBO 晶体中同时满足相位匹配条件, 产生差频、和频及其级联效应。实验运用了中心波长 800 nm、重复频率 10 Hz、脉宽 60 fs 及光斑直径 7 mm 的钛蓝宝石再生放大飞秒激光, 输出约为 10 mJ 的能量以 7:3 分束。其中 7 mJ 光脉冲用一块非线性晶体 BBO 倍频至 400 nm 获得 1.45 mJ 能量, 然后与另一束 800 nm 的 3 mJ 基频激光以非共线方式注入到另一块 BBO 中, 在兼顾和频与差频的相位匹配条件下, 即晶体对于和频与差频相位匹配状态同时存在少量失谐时, 会同时产生 267 nm 与 800 nm 的和频与差频效应, 新产生光波与原入射激光脉冲又经过进一步非线性混频作用, 最终得到多达 10 余束可见、紫外的一维阵列。分析了此级联非线性效应的产生机理并讨论了入射光强度、啁啾、延迟等因素对级联效果的影响。

关键词 超快脉冲激光; 级联非线性效应; 非线性频率转换; 紫外

中图分类号 O437 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20082809.1761

Experimental Research of Cascading Nonlinear Effect in BBO Crystal

Wang Yanling Li Xian Zhou Xugui Wu Hong Xu Shixiang Ding Liangen

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

Abstract The sum frequency, difference frequency and corresponding cascading nonlinear effect were reported with 800 nm and 400 nm femtosecond light beams satisfying the phase-matching condition in BBO crystal. We obtain sum-frequency 267 nm and difference-frequency 800 nm waves simultaneously, taking account of phase matching of sum frequency and difference frequency. The laser pulses are with 10 Hz repetition rate, 800 nm central wavelength, 60 fs pulse width and 7 mm spot diameter. The 10 mJ output energy of the Ti:sapphire regenerative amplifier are split into two beams, and 70% energy is frequency doubled to 1.45 mJ of 400 nm by the first nonlinear crystal BBO and then injected into the second one with 3 mJ, 800 nm laser beam. For both of them there exists a small amount of detuning. When the new pulses mix frequency with input waves further, one-dimensional array of more than 10 beams including ultraviolet, visible bands can be observed. The mechanism and influencing factors of the input light intensity, chirp, relative time delay on the cascading nonlinear effect are investigated in details.

Key words ultrafast pulsed laser; cascading nonlinear effect; nonlinear frequency conversion; ultraviolet

1 引 言

光学非线性频率转换是实现激光波长拓展的重要手段。随着超快激光及其放大技术的出现, 超强超快非线性光学的研究也变得空前活跃^[1~6]。20 世纪 80 年代以后, 涌现出许多透明范围更宽、匹配

波长更长的晶体, 如 KTP、BBO、LBO、KTA、MgO:LiNbO₃、AgGaSe₂、AgGaS₂、CdSe 等, 使非线性光学频率变换技术得到很大进步。光学参变振荡, 光学参变放大以及光参变啁啾脉冲放大等技术也相应获得巨大发展。新型光学超晶格材料技术, 更为人

收稿日期: 2008-01-16; **收到修改稿日期**: 2008-03-03

基金项目: 国家 973 计划(2006CB0806001)、上海市浦江人才计划(06PJ14035)和教育部重点基金(107047)资助课题。

作者简介: 王燕玲(1979 —), 女, 博士研究生, 主要从事超快强激光技术方面的研究。

E-mail: 52060602013@ecnu.cn

导师简介: 丁良恩(1949 —), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事超快强激光技术和量子信息光学等方面的研究。

E-mail: leding@phy.ecnu.edu.cn

们呈现一种全新的准相位匹配光学参变振荡器。迄今为止,在强场物理、阿秒光学、激光光谱学和等离子体物理等领域^[7]都涉及到超快非线性光学效应。

本文介绍用两束中心波长分别为 800 nm 和 400 nm 的飞秒激光以非共线方式注入到一块 β -BBO 晶体中出现级联非线性效应和由此产生的多束可见及紫外激光现象,给出相应的理论分析,讨论了入射光强度、啁啾、延迟等因素对级联效果的影响。

2 实 验

实验装置如图 1 所示。重复频率 10 Hz、中心波长 800 nm、脉宽 60 fs 的 TSA-25 钛宝石啁啾脉冲放大(CPA)系统输出直径 7 mm 能量约 10 mJ 的激光经 3:7 分束片 BM 分为两束。70% 透射光经过 0.2 mm 厚、切割角为 29.2° 的 I 类相位匹配晶体 BBO1 倍频获得 1.45 mJ 能量的 400 nm 光脉冲,然

后入射到另一厚 0.2 mm,切割角为 31.5° 的 I 类相位匹配 BBO2 上。30% 反射光束通过一时间延迟线后,与前一束光以 2.5° 的夹角注入到 BBO2 晶体中,调节光学延迟线使 400 nm 和另一束 800 nm 光在时间上精确同步,这两束光的光谱图如图 2 所示。

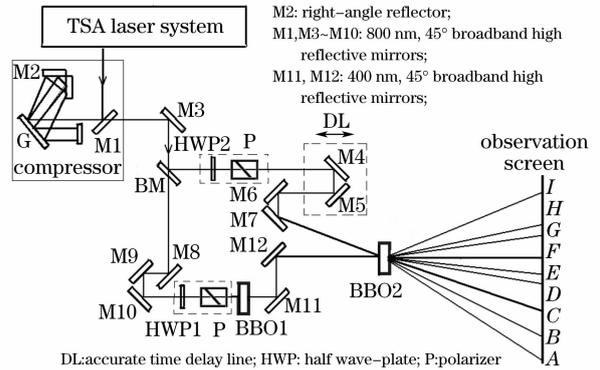


图 1 实验装置图

Fig. 1 Schematic of the experimental setup

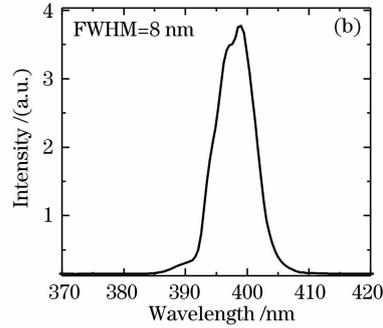
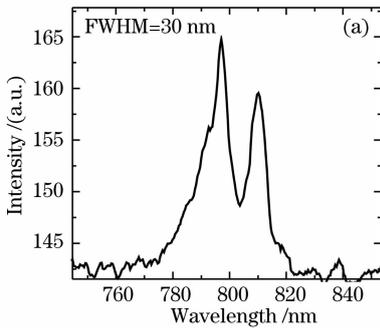


图 2 入射到 BBO2 的 800 nm (a)和 400 nm (b)光谱

Fig. 2 Spectra of the input 800 nm (a) and 400 nm (b) pulses on BBO2

调节 BBO2 时发现,当满足和频相位匹配条件时,在两光之间能得到很强的紫外光;当满足差频相位匹配条件时,在 400 nm 光外侧能得到新产生的强 800 nm 差频光;若将晶体调至既偏离和频又偏离差频并且各自都只有少量失配时,则在观测屏处可同时观察到中心波长在 267 nm、400 nm 和 800 nm 附近

的多个光斑,如图 3 所示。为方便讨论,将图 3 拍摄到的光斑分别记为:A、B、C、D、E、F、G、H 和 I。

其中 C、F 为两入射光经过晶体 BBO2 后的剩余光。其余的都是这两束光相互作用后得到的,各光束光谱图如图 4 所示。其中 A 以 400 nm 光谱为主,含有少量 800 nm 部分。B、D 的中心波长均在

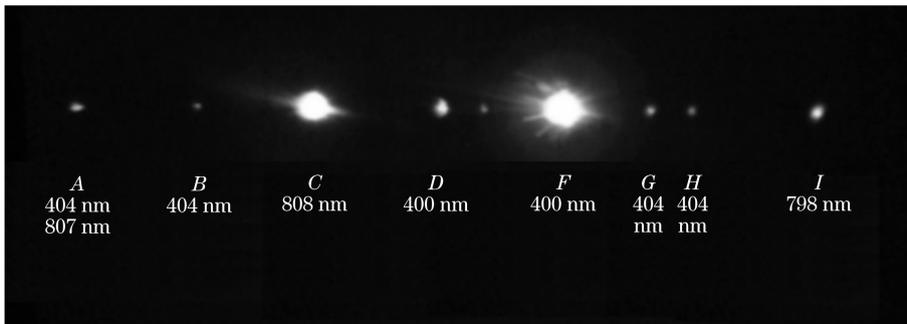


图 3 在图 1 的观测屏处拍摄到的激光光斑照片

Fig. 3 Photo of laser spot at observing screen of Fig. 1

400 nm 附近,而 *H* 光斑中心波长则在 404 nm 处。不同位置测到紫外光,即 *E* 和 *G* 点,其中心波长分别在 267 nm 和 269 nm 处。*I* 点光斑所测中心波长为 798 nm。实验中在两个

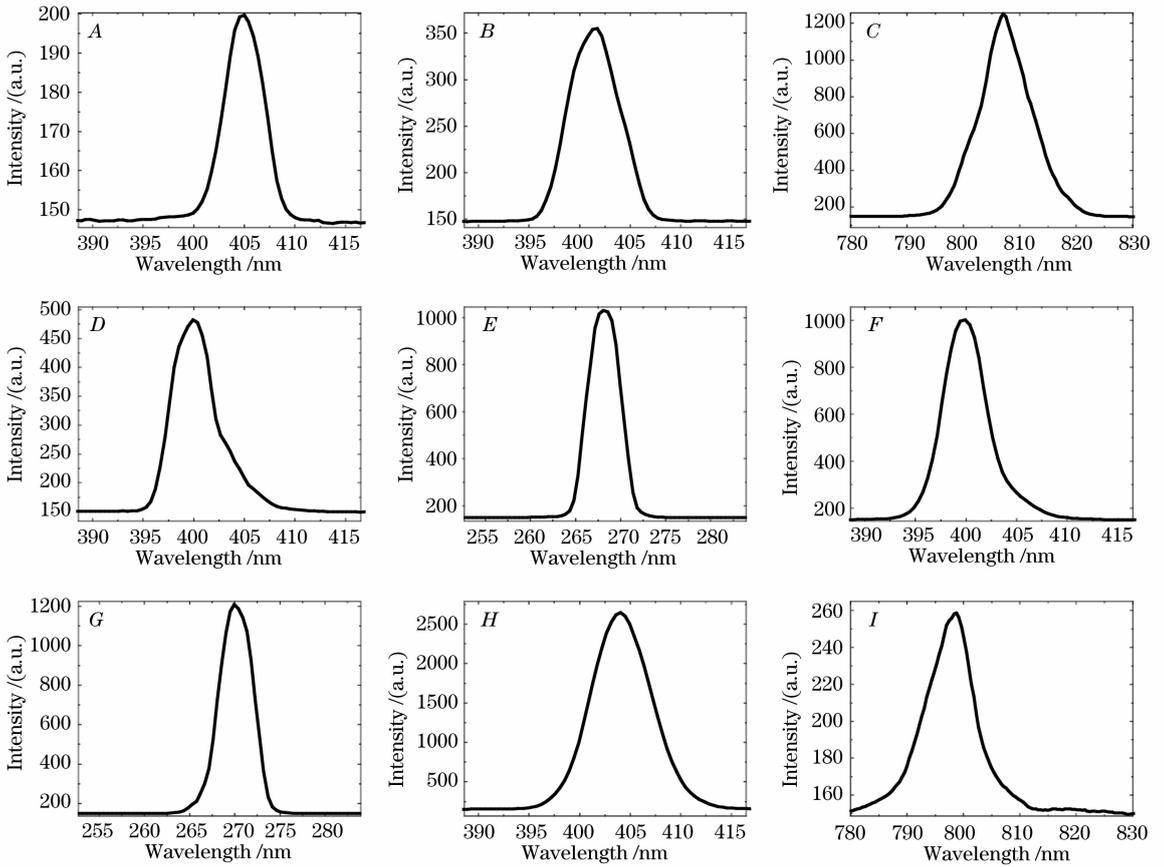


图 4 A~I 的光谱图

Fig. 4 Spectra of A~I

实验测出 *C*、*E*、*F*、*I* 的偏振状态(图 5),可以看到入射到 BBO2 的两束光偏振基本垂直,其和频产生的 *E* 与差频产生的 *I* 与 800 nm 光偏振大致相同。这说明和频过程 $C+F \rightarrow E$ 应为 II 类相位匹配,而差频过程 $F-C \rightarrow I$ 应为 I 类相位匹配。

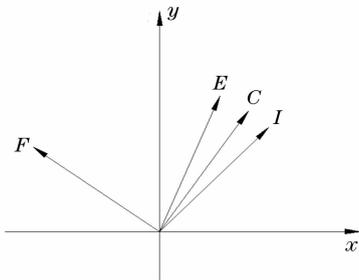


图 5 偏振状态

Fig. 5 Polarization states

然满足能量和动量守恒。中心波长为 800 nm 和 400 nm 超短激光脉冲相互作用将产生和频光 267 nm 或者差频光 800 nm。即 $\omega_{400} + \omega_{800} = \omega_{267}$ 或 $\omega_{400} - \omega_{800} = \omega_{800}$, 对应的波矢关系如图 6 所示。

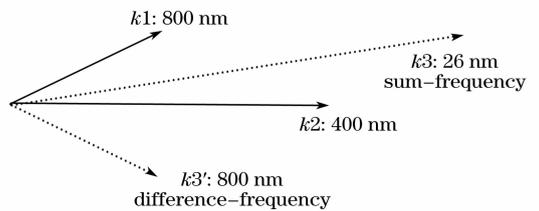


图 6 800 nm 和 400 nm 激光和频与差频的波矢关系图
Fig. 6 Phase matching *k*-vector triangle for sum frequency and difference frequency of 800 nm and 400 nm

本实验为 II 类相位匹配和频过程,对应的匹配角应为 54.5° 。假设 $\lambda_1 = 800 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 400 \text{ nm}$ 和 $\lambda_3 = 267 \text{ nm}$,其中 800 nm 和 267 nm 偏振状态一致均为 e 光,400 nm 为 o 光。根据塞尔迈耶尔公式以及相位匹配条件可以求出 o 光 $n_{400} = 1.6930$, θ 方向 e 光的 $n_{800} = 1.5808$, $n_{267} = 1.6569$ 。由此可以求出

3 结果分析

3.1 非线性混频效应

在非线性频率转换过程中,相互耦合的三光必

图 6 中 $\angle k_1ok_3 \approx 2.5416^\circ$, $\angle k_3ok_2 \approx 1.1863^\circ$, 得到

$$\angle k_1ok_3 / \angle k_3ok_2 \approx 2/1. \quad (1)$$

同样的道理可以求出

$$\angle k_1ok_2 \approx \angle k_2ok'_3. \quad (2)$$

3.2 级联非线性效应

将光斑间距(图 3)转化成晶体内的角度, 以及利用和频差频的角度规律(1)式、(2)式, 可确定出图 7 中各光波矢量关系, 实线表示新产生波为一次非线性作用, 虚线表示为级联非线性作用。

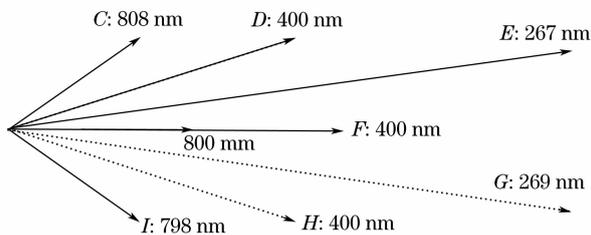


图 7 相应光波矢量图

Fig. 7 Geometry of phase-matching wave vector

其中光斑 E 和 I 为直接生成的和频 267 nm 与

差频 800 nm 光。并初步推断 G 是新产生的 I(800 nm) 又与 F(400 nm) 和频产生的, 而 H 是新产生的 I(800 nm) 又与 F 中重叠 800 nm 光和频产生的, 即 G 和 H 是级联非线性频率转换后的结果。它们的关系可表示为

$$F - C \rightarrow I; F + I \rightarrow G; C + F \rightarrow E;$$

$$C + F(\text{剩余 } 800 \text{ 部分}) \rightarrow D;$$

$$F(\text{剩余 } 800 \text{ 部分}) + I \rightarrow H.$$

可以看到在各波段中不同光斑的光谱会有少量偏移, 比如 G 和 I 的光谱中心分别偏至 269 nm 和 798 nm。这是因为各非线性过程都不是最佳相位匹配状态造成的, 当晶体存在一定失谐角度时, 会使中心波长附近的某一波长得到最佳匹配, 这样通过非线性作用后得到的波长中心就会有所偏移。

3.2.1 入射光强度对级联效果的影响

在两光路中分别加入半波片和偏振片, 用于控制光强变化, 分析其对新产生光波的强度影响。选择 H(404 nm)、I(798 nm) 为分析对象, 实验结果如图 8 所示。

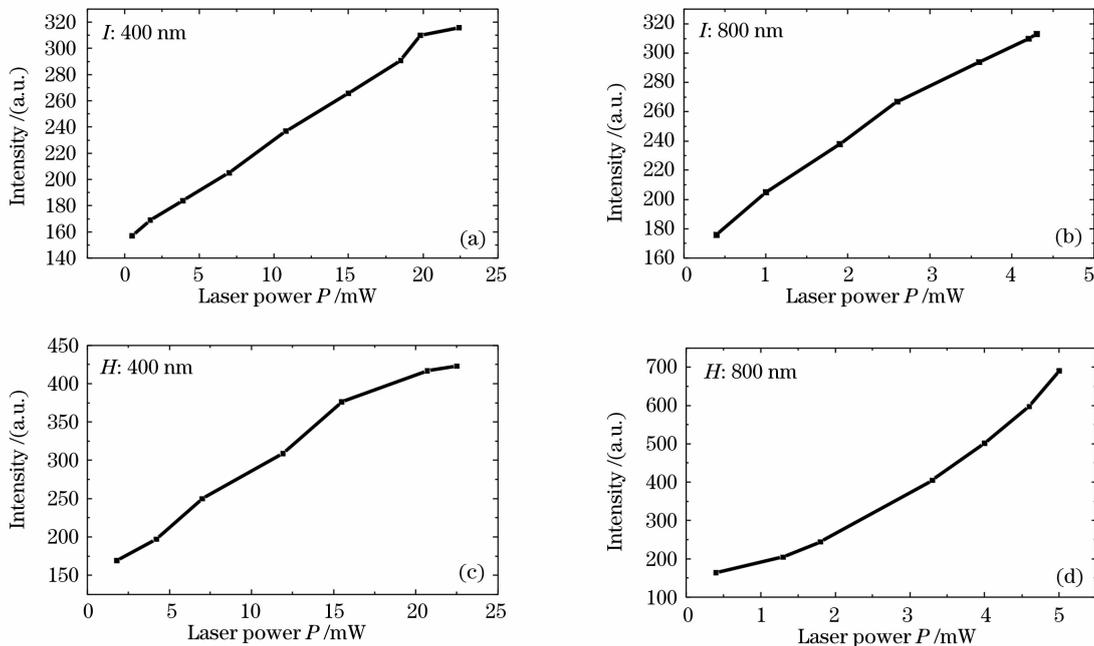


图 8 光斑 H (404 nm) 和 I (798 nm) 的光强与入射光功率的关系

Fig. 8 Intensities of H (404 nm) and I (798 nm) versus input laser power

在非线性频率转换过程中, 新产生光强可表示为^[8]

$$|I_3| \propto |I_1| |I_2|, \quad (3)$$

即一次非线性效应产生的 I 光强应分别与两入射光强成正比关系[图 8(a) 和图 8(b)]。而对于 H 点

$$|I_H| \propto |I_{F(800)}| |I_I|, \quad |I_I| \propto |I_{F(400)}| |I_C|, \quad (4)$$

得到

$$|I_H| \propto |I_{F(800)}| |I_{F(400)}| |I_C|, \quad (5)$$

其中 $I_{F(400)}$, $I_{F(800)}$ 分别为倍频后光束 F 中 400 nm 和 800 nm 光强。当旋转图 1 中半波片 HWP1 时, 有 $|I_{F(800)}| \propto |I_F|$, $|I_{F(400)}| \propto |I_F|$, 最终得到

$$|I_H| \propto |I_F|^2 |I_C|. \quad (6)$$

$|I_F|$ 和 $|I_C|$ 分别为钛宝石 CPA 系统输出光分束后的光强,由此看出,级联作用得到的 H 点与 C 光束成正比,与 F 光束成平方关系[图 8(c)和图 8(d)].

3.2.2 入射光啁啾对级联效应的影响

调节钛宝石 CPA 系统压缩器中直角镜与光栅之间的距离 G-M2(图 1),改变其啁啾程度^[9],即改变入射光脉宽,发现当各光斑强度最强时,直角镜相对于种子光初始零啁啾状态移动 1 mm.

据二阶色散公式^[10]

$$\phi_2 = -\frac{\lambda^3 b}{\pi c^2 d^2 \cos^3 \theta}, \quad (7)$$

λ 为中心波长, b 为移动的相对长度, θ 为一级衍射角, d 为光栅常数. 使用的光栅为 1500 groove/mm, θ 为 43.63° . 得到对应的二阶色散量为 -11937 fs^2 .

3.2.3 入射光延迟对级联效应的影响

改变入射光之间的延迟量,对非线性效应也有较大影响. 先将脉冲时域上重叠最佳状态记为 0 延迟,然后通过控制精确时间延迟线改变 800 nm 基频光的光程,并假设 800 nm 光超前于 400 nm 光状态为正,滞后为负,测出光斑 E 、 G 强度与延迟关系(图 9).

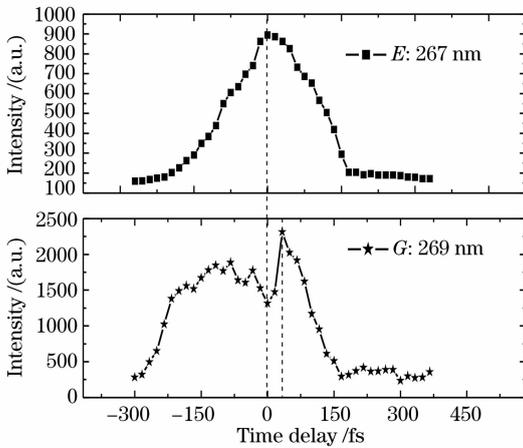


图 9 紫外光强度随两束入射光相对延迟的变化

Fig. 9 Dependence of ultraviolet light intensity on the relative time delays of two input beams

可以看到 E 点的互相关宽度约为 486 fs, I 点的互相关宽度约为 666 fs, 相对于入射光脉冲有很大的加宽. 由于级联现象时种子光带有适量负啁啾 -11937 fs^2 , 代入下式:

$$\tau'_0 = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \cdot \Delta\tau_2}{\tau_0^2} \right)^2}, \quad (8)$$

式中 τ_0 为入射光脉宽 60 fs, $\Delta\tau_2$ 为啁啾脉冲的二阶色散量, τ'_0 为对应 $\Delta\tau_2$ 的啁啾脉冲宽度, 代入数值可以求出啁啾脉宽为 554 fs. 这就是导致新产生的各

光斑的互相关宽度加宽的原因. 除此之外, 第二路光倍频时受相位匹配带宽的限制会使得光谱窄化, 对应的倍频光脉冲宽度也会变宽, 并且在传播过程中由各种光学元件引起的各种色散也导致脉冲宽度变宽. 其中 G 点是由新产生的 I 点又和 400 nm 光相互作用产生的, 经过了两次非线性作用, 色散加深使得相对于 E 点它的互相关宽度更宽. 这也说明光斑 G 是级联作用的结果. 由图 9 可以看到 E 点强度为关于中心对称分布, 而 G 点强度为不对称分布, 红光滞后于蓝光状态时产生的紫外强度更强, 这是因为基波经 BBO 晶体时会引入一定量的正啁啾, 使一次非线性作用新产生的红光在前, 相对于基波蓝光有一定超前, 这样当入射两基波中红光稍滞后于蓝光时刚好和一次非线性作用引入的延迟量相抵消, 使得级联效果更明显. 而 E 和 G 强度最高峰位置并不是同时出现, 约有 33 fs 的时间差, 说明 G 并非与 E 同样在晶体中经历一次非线性效应, G 是级联作用的体现.

4 结 论

将超快激光以非共线方式入射到非线性晶体 BBO 中, 当兼顾和频与差频的相位匹配条件时, 实现了级联的非线性效应, 分别得到中心波长约为 267 nm, 400 nm, 800 nm 的一维多束可见和紫外激光阵列. 实验表明, 两次非线性作用产生的新波强度与基波强度成平方关系, 入射光脉冲带有适量负啁啾的时候, 级联作用更强. 由于色散加深的原因, 级联非线性效应比一次非线性频率转换具有更宽的脉宽, 转换效率最高处会有一定延迟. 当红光滞后于蓝光状态时, 由级联得到的紫外光更强.

参 考 文 献

- Emily A. Gibson, Ariel Paul, Nick Wagner *et al.*. Coherent soft X-ray generation in the water window with quasi-phase matching [J]. *Science*, 2003, **302**(5642): 95~98
- Li Yutong, Yuan Xiaohui, Xu Miaohua *et al.*. A fast electron beam along a target surface irradiated by intense laser pulses[J]. *Physics*, 2006, **35**(9): 716~720
李玉同, 远晓辉, 徐妙华等. 强激光与等离子体相互作用中沿靶表面发射的高能超热电子[J]. *物理*, 2006, **35**(9): 716~720
- Zhang Liping, Li Haining, Wu Hong *et al.*. Ultrabroadband continuum spectrum generated in Ar gas [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57**(2): 904~908
张丽平, 李海宁, 吴洪等. Ar 气中超连续谱产生的研究[J]. *物理学报*, 2008, **57**(2): 904~908
- Peng Yan, Xu Han, Yang Xuan *et al.*. Generation of carrier-envelope-phase stabilized 6 fs ultrashort pulses and their application in high-order harmonic generation [J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(11): 1486~1490

- 彭 滢,徐 哈,杨 旋等. 载波包络相位稳定的 6 fs 超快强激光脉冲及其在高次谐波产生中的应用[J]. 中国激光, 2006, **33**(11): 1486~1490
- 5 Dong Quanli, Yan Fei, Zhang Jie. The measurement and analysis of the prolonged lifetime of the plasma channel formed by short pulse laser in air[J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **54**(7): 3247~3251
- 董全力,燕 飞,张 杰等. 大气中激光等离子体通道寿命的延长及测量分析[J]. 物理学报, 2005, **54**(7): 3247~3251
- 6 Cang Yu, Wei Zhiyi, Zhang Jie. New frontier of ultrafast lasers: attosecond science[J]. *Physics*, 2001, **30**(11): 681~685
- 苍 宇,魏志义,张 杰. 超快激光的新前沿——阿秒科学[J]. 物理, 2001, **30**(11): 681~685
- 7 Peng Hansheng. Ultraintense solid-state lasers and applications to the frontiers of sciences[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(6): 721~729
- 彭翰生. 超强固体激光及其在前沿学科中的应用[J]. 中国激光, 2006, **33**(6): 721~729
- 8 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术[M]. 北京: 科学出版社, 1995. 72
- 9 Hu Wanyue, Wang Eryu, Li Wenxue *et al.*. Aberration-free stretcher based on concentric diffraction for sub-10 fs pulses[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(1) : 181~186
- 胡婉约,王二玉,李文雪等. 适用于亚 10 fs 的共心衍射无像差展宽器[J]. 光学学报, 2007, **27**(1) : 181~186
- 10 Hu Wanyue. *Chirp Control of Ultrafast Pulse in CPA System* [D]. Shanghai: East China Normal University, 2006. 45~47
- 胡婉约. 基于超快激光放大系统的啁啾效应控制[D]. 上海: 华东师范大学, 2006. 45~47