

文章编号: 0253-2239(2009)09-2630-05

空间走离和相速度补偿的高效飞秒脉冲倍频

周绪桂 王燕玲 吴 洪 丁良恩

(华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

摘要 采用两块大小均为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.2\text{ mm}$ 的 BBO 晶体级联的实验方案对中心波长为 800 nm 、脉宽 70 fs 、重复频率 10 Hz 的激光进行了倍频, 针对 BBO 晶体的空间走离和相速度失配, 分别调节两块倍频晶体的光轴夹角和基频光的角度匹配失谐量。实验表明, 两块倍频晶体光轴反向平行可以补偿空间走离效应, 一定的角度失谐可以补偿基频光和倍频光的相速度失配。在无聚焦情况下, 使用两块 BBO 晶体级联相互配合优化将 8.1 mJ 的入射基频光倍频后得到带宽 6.7 nm (傅里叶转换极限脉冲宽度为 35 fs)、 2.8 mJ 以上的倍频光。其倍频效率高达 35.7% , 是同等条件下单块晶体倍频转换效率的 1.7 倍。

关键词 非线性光学; 倍频; 晶体级联; 空间走离补偿; 相速度补偿

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20092909.2630

High Efficiency Frequency-Doubling of Femtosecond Laser Pulses with Simultaneously Spatial Walk-Off and Phase Velocity Compensation

Zhou Xugui Wang Yanling Wu Hong Ding Liang'en

(*State Key Laboratory of Precision Spectroscopy Science and Technology,*
East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract Frequency-doubling is investigated using two BBO crystals with 70-fs , 800-nm laser pulses at the repetition of 10 Hz . The size of crystals are both $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.2\text{ mm}$. Focused on spatial walk-off and phase velocity mismatching, the angle between the axes of the two crystals and the phase velocity mismatching of the fundamental pulse are adjusted respectively. It is experimentally demonstrated that the spatial walk-off could be compensated by use of two crystals placed anti-parallel, and angle mismatching with some degree may compensate phase velocity mismatching of the frequency-doubled pulse. The frequency-doubled pulse with bandwidth of 6.7 nm and energy of more than 2.8 mJ is achieved. The frequency-doubling conversion efficiency reaches 35.7% , which is improved by a factor of 1.7 related to a single crystal in the same condition.

Key words nonlinear optics; frequency doubling; multi-crystals; spatial walk-off compensation; phase velocity compensation

1 引 言

激光倍频技术是获得短波长超短脉冲激光的有效途径之一。对于强场超短激光脉冲而言, 晶体中的群速度失配、群速度色散^[1]、自相位调制^[2]和交叉相位调制^[3]等非线性效应的产生会严重影响倍频效率的提高。其中, 群速度失配导致了基频光和倍频光的时间走离。对此, 一些研究小组采用晶体级联

的方案提高倍频转换效率, 晶体级联不需要对光路作大的改动, 只需在原来的晶体后面再级联晶体就可实现高效谐波转换^[3], 具有简单高效的特点。

Krylov 等用 4 块长度分别为 $3, 5, 10, 40\text{ mm}$ 的 KDP 晶体对脉冲宽度 150 fs , 中心波长 780 nm , 峰值功率密度 150 GW/cm^2 的光进行倍频^[4], 转换效率略低于 50% 。Ruddell J. Gehr 等用 5 块长度分别

收稿日期: 2008-10-31; 收到修改稿日期: 2008-12-10

基金项目: 国家 973 计划(2006CB0806001)、上海市重点学科建设项目(B408)和教育部长江学者和创新团队发展计划资助课题。

作者简介: 周绪桂(1982-), 女, 硕士研究生, 主要从事超快强激光技术方面的研究。E-mail: 51060602050@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方面的研究。

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

为 1,1.5,1,1.5,1 mm BBO 晶体对脉冲宽度 250 fs, 中心波长 800 nm 的脉冲进行倍频^[5], 转换效率为 33.7%。William. J. Alford 等用 5 块长度均为 2 mm 的 BBO 晶体对中心波长 420 nm, 脉冲宽度 1 ns 的脉冲进行倍频模拟^[6], 转换效率高达 50%。Jean-Jacques Zondy 等用 10 块长 10 mm 的 KTP 晶体对中心波长 1064 nm 的光脉冲进行倍频^[7], 其转换效率是同等条件下单块长 100 mm 的 KTP 晶体倍频转换效率的 15 倍。本文采用两块长度均为 0.2 mm 的 BBO 晶体级联的实验方案对中心波长为 800 nm、脉宽 70 fs、脉冲能量 8.1 mJ、重复频率 10 Hz、峰值功率密度 100 MW/cm² 的激光进行了倍频, 倍频效率高达 35.7%。

2 实验装置及实验分析

实验采用改造过的商用钛宝石飞秒激光系统, 该系统由脉宽小于 12 fs 的振荡源 (Compact Pro, Femtolasers GmbH), 自建展宽器^[8] 和 TSA-25 系统中的再生放大器、两通放大器及压缩器组成。输出光谱中心波长 800 nm, 用 Ocean Optics 公司生产

的光纤光谱仪 HR2000 测得输出谱线半峰全宽 (FWHM) 为 40 nm。激光脉宽约 70 fs, 重复频率 10 Hz, 单脉冲能量 12 mJ。

实验光路图如图 1 所示, 其中 BS 为分束片、M₁~M₈ 为 800 nm 平面高反镜、M₉ 和 M₁₀ 为 400 nm 平面高反镜、椭圆形框内部为 BBO 倍频晶体组, 晶体内部虚线箭头为晶体光轴方向, 短实线箭头为空间走离方向, BBO III 为和频晶体, DL 为延时器。由 TSA-25 输出经压缩器压缩后, 中心波长为 800 nm、脉冲时间宽度为 70 fs、重复频率为 10 Hz、单脉冲能量为 12 mJ 的线偏振激光脉冲经分束片 BS 以 3:7 的比例分成两束, 其中能量较高的一束经平面高反镜 M₂、M₃、M₄ 反射后进入两块 BBO 倍频晶体。能量较低的一束经过精密电控平移台 DL (精度 0.1 μm) 上的直角镜反射后与倍频后的光一起通入和频晶体 BBO III。椭圆形框为 BBO 倍频晶体组, 晶体内部虚线箭头为晶体光轴方向, 短实线箭头为空间走离方向。虚框内的装置在测量倍频后的光与基频光的后相关性时使用。

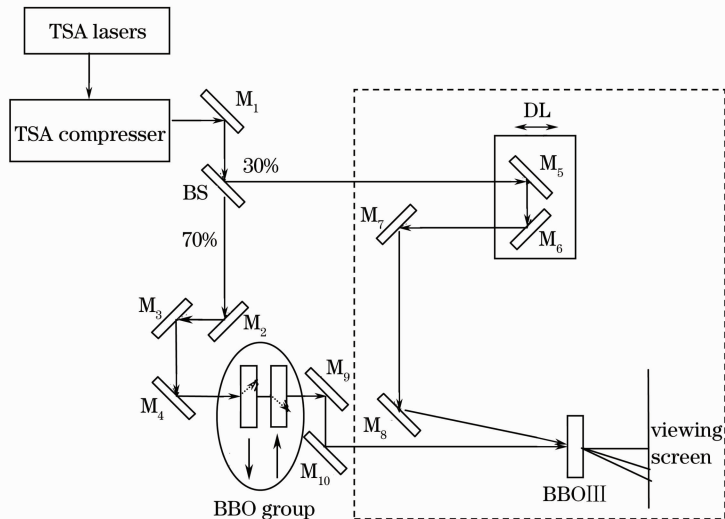


图 1 实验装置图

Fig. 1 Experimental setup

实验中使用的晶体材料都是 β -BaB₂O₄ 倍频晶体大小均为 10 mm×10 mm×0.2 mm, 相位匹配角为 29.2°。

2.1 BBO 晶体中的空间走离补偿

实验中, 在 M₁₀ 后面放置光功率计, 用来测量倍频光功率的大小。放置单块 BBO 晶体, 转换效率可达 20.9%, 但在 BBO 晶体后面可以明显看到 400 nm 和 800 nm 的光斑分离, 发生了空间走离

效应。

同时放置两块晶体, 并转动倍频晶体 BBO II 360° 的过程中, 发现倍频光能量大小出现几次极值, 分别对应两块晶体光轴夹角为 0, $\pi/2$, π 和 $3\pi/2$ 的位置。因此, 实验分别研究了两块 BBO 晶体光轴夹角为 0, $\pi/2$ 以及 π 时倍频效率的大小。结果如表 1 所示。

表 1 晶体光轴夹角对倍频效率的影响

Table 1 Frequency-doubling efficiency depends on angle between two crystal axes

Number	included angle	conversion efficiency
1	—	20.9%
2	0	24.5%
2	$\pi/2$	17.7%
2	π	31.6%

同时放置两块晶体时,倍频效率有所提高。当输入光功率一定时,倍频转换效率随着非线性介质的长度增加而增加^[9]。但是晶体长度越大,空间走离和时间走离越大,又抑制了倍频转换效率的增加^[2]。因此,放置两块晶体比放置一块晶体时,倍频转换效率有所增加。

两块晶体光轴夹角为 π 时,倍频转换效率有明显提高。如图 1 椭圆形框内所示。前一块晶体的空间走离方向(实短箭头)是偏离基频光向下,后一块晶体的空间走离方向是偏离基频光向上,光通过这样两块晶体后,空间走离效应就得到补偿。两块晶体相位匹配角都是 29.2° ,计算得到基频光和倍频光的空间走离角大小都是 3.89° 。但是走离的方向相反,空间走离得到了补偿。因此倍频转换效率会明显提高。

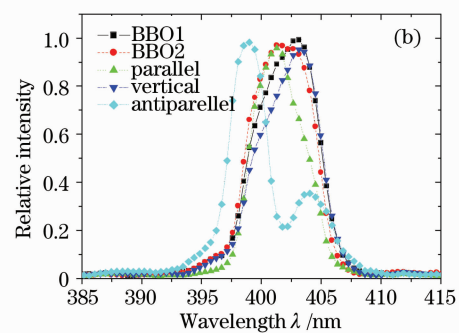
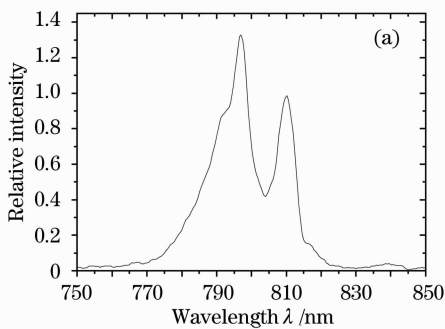


图 2 基频(a)和倍频光(b)光谱图

Fig. 2 The fundamental-wave spectrum(a) and second harmonic spectrum(b)

2.2 BBO 晶体中的相速度补偿

相位匹配技术^[10]是实现高效频率转换的基本方法之一,即利用非线性晶体的双折射与色散特性达到相位匹配,使参与相互作用的光波在介质中传播时具有相同的相速度。本实验采用 BBO 晶体 I 类相位匹配($o+o \rightarrow e$),即 $n_o(\omega) = n_e(2\omega, \theta)$ 。对于中心波长 800 nm 的激光脉冲,相位匹配角为 29.2° 。

由于超短脉冲具有很宽的频谱宽度,仅仅在一个特定频率实现相位匹配条件,其他频率成分分量必然存在相位失配而造成增益下降^[10]。倘若使级联的两块晶体对不同的频率成分满足相位匹配,

图 2 是基频光(a)和倍频光(b)光谱图。其中,图 2(b) 所示都是基频光垂直入射到晶体表面得到的。单独放置 BBO I 时的 FWHM 为 6.2 nm;单独放置 BBO II 的 FWHM 为 6.19 nm;平行放置两块晶体倍频光脉冲的 FWHM 为 5.28 nm;垂直放置两块晶体倍频光脉冲 FWHM 为 6.11 nm;反平行放置两块晶体倍频光脉冲的 FWHM 为 3.5 nm。实验室使用的 800 nm 平面高反镜在 804 nm 的反射率明显低于光谱范围内的其它波长,造成了 804 nm 缺失。由图 2(b)可以看出,单块晶体倍频得到的倍频光的带宽(FWHM)稍大于其它情况下的 FWHM。因为倍频光光谱宽度^[2]可以用 $\Delta\omega = 2\pi/(l|v|)$ 来表示, l 是非线性晶体长度, v 是群速度失配,即光谱宽度与非线性晶体长度成反比^[2],所以随着晶体长度的增加,相应的 FWHM 就减小。两块晶体级联且光轴垂直(以下简称垂直放置)时,由于后一块晶体的快、慢轴相对于前一块晶体的快、慢轴旋转 $\pi/2$ 。于是,在前一块晶体的沿快/慢轴传输的基频光在第二块晶体中将沿慢/快轴传输,群速度色散得到补偿,其相应的 FWHM 较宽。两块晶体级联且光轴反向(以下简称反向放置)时,光谱出现了调制,且 FWHM 明显变窄。

这样两块晶体之间可以相互配合优化频率转换过程,提高转换效率。这样,在两块晶体中对于中心频率都有一定量的相位失配,造成基频光与倍频光的相速度不同。

由 BBO 晶体的 Selleimer 方程^[10]和负单轴晶体的 e 光折射率公式^[11]计算所得基频光和倍频光折射率随入射光与晶体光轴之间夹角的变化曲线如图 3 所示,基波法线方向与光轴方向的夹角 θ 发生变化时,可导致倍频光相对基频光的正色散和负色散。当 θ 小于 29.2° 时,倍频光折射率大于基频光折射率。反之,倍频光折射率小于基频光折射率。

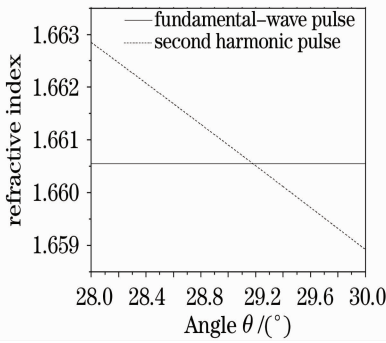


图3 基频光和倍频光折射率随入射光与晶体光轴之间夹角的变化曲线

Fig. 3 The refractive index of the fundamental-wave pulse and the second harmonic pulse as a function of angle between incident and the axes of the crystal

在两块晶体的倍频中,让光通过前一块晶体时 $n_o(\omega) > n_c(2\omega, \theta)$,基频光的相速度小于倍频光的相速度;而通过后一块晶块时 $n_o(\omega) < n_c(2\omega, \theta)$,基频光的相速度大于倍频光的相速度,这样倍频光通过第一块晶体超前的速度在通过第二块晶体时得到了补偿。通过这种方法可以提高转换效率,且能增大带宽。

实验中,将能量较高的一束光用单块 BBO 晶体直接倍频,倍频晶体后的两片 400 nm 平面高反镜均不使用,倍频后的光(包括 400 nm 和 800 nm)与经 DL(延时器)后的基频光一起入射到和频 BBO 晶体,组成一个互相关测量仪,实验光路图如图 1 所示。基频光和倍频后的光经过和频 BBO 晶体会产生和频光,既有基频 800 nm 的光和倍频 400 nm 的光产生的 267 nm 的信号,也有 800 nm 的基频光和倍频后剩余的 800 nm 的光产生的 400 nm 的信号。调节延时器,同时记录延时器的位置和信号光的强度,根据记录的数据作曲线图,这个图形称作互相关曲线图。分别找到两条曲线的最高点,比较最高点延时器所在位置,求出位置差,计算得到基频光和倍频光的时间差,从而推出基频光和倍频光的相速度大小关系。

定义 α 为基频光入射方向偏离正入射(垂直入射到晶体表面为正入射)的角度大小,偏离正入射向左 $\alpha < 0$,反之 $\alpha > 0$ 。倍频光超前时间差为正,反之则为负。调节 α ,测量基频光与倍频光的时间差作图。实验中取了 7 个观测点,结果如图 4 所示。由图可以看出: $\alpha < 0$ 时,倍频光超前,即倍频光的相速度大于基频光的相速度。 $\alpha > 0$ 时,倍频光滞后,即倍频光的相速度小于基频光的相速度。这与计算得到的结果一致。其中当入射光偏离正入射 -0.216° 时,

倍频光超前 114.6 fs;入射光偏离正入射 $+0.216^\circ$ 时,倍频光滞后 119 fs。

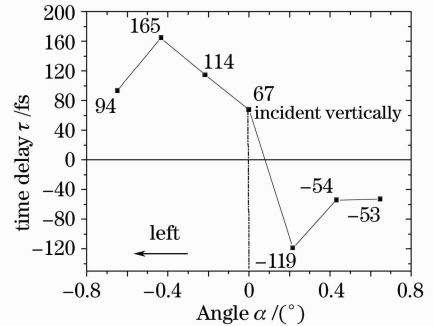


图4 倍频后基频光与倍频光的时间差随基频光入射角的变化。时间差大于零表示倍频光在前
Fig. 4 Time delay between fundamental-wave pulse and second harmonic pulse after frequency doubled. Positive value of the time delay means that second harmonic pulse transmits ahead

3 实验结果

根据以上的实验分析,调节使两块晶体的光轴夹角反向平行,并且使两块晶体入射方向均偏离正入射,有一定的角度匹配失谐量。让第一块晶体的入射光偏离正入射 -0.216° ,倍频光超前,此时根据相干长度计算公式^[10] $L_c = \pi/\Delta k$ 计算得到相干长度 L_c 为 0.47 mm,大于晶体长度,倍频光的能量不断增长^[1];第二块晶体的入射光偏离正入射 $+0.216^\circ$ 倍频光滞后,计算得到相干长度 L_c 为 0.48 mm,同样大于晶体长度。优化后得到倍频后光能量为 2.89 mJ,倍频前光能量为 8.1 mJ,转换效率为 35.7%。其光谱如图 5 所示,FWHM 为 6.7 nm,比单块晶体倍频得到的 FWHM 增宽 0.5 nm。

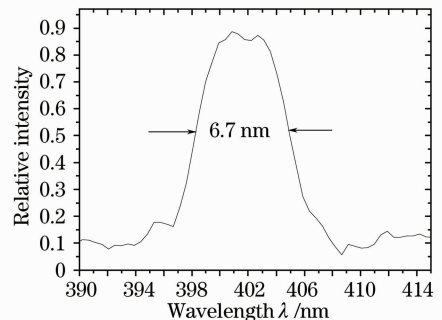


图5 空间走离和相速度补偿后的倍频光光谱图。

其 FWHM 大小为 6.7 nm

Fig. 5 The spectrum of second harmonic pulse after spatial walk-off and phase velocity compensation.

The bandwidth is 6.7 nm

4 结 论

采用两块 BBO 晶体级联的实验方案对中心波长为 800 nm、脉宽 70 fs、脉冲能量 8.1 mJ、重复频率 10 Hz、功率密度 100 MW/cm² 的激光进行了倍频,得到带宽 6.7 nm(傅里叶转换极限脉冲宽度为 35 fs)、2.8 mJ 以上的倍频光,倍频效率高达 35.7%。晶体级联并反向放置可以补偿空间走离。另外,晶体级联方案中使每块晶体的晶轴与波矢成不同的夹角,满足一小段频率的相位匹配角,以提高整个频段的转换带宽。从相速度和折射率的角度解释容易理解,并且在正色散介质中得到了基频光相对倍频光负色散的结果,为下一步开展高效共线三次谐波产生研究打下了基础。

参 考 文 献

- 1 Wenhua Su, Liejia Qian, Hang Luo *et al.*. Induced group-velocity dispersion in phase-mismatched second-harmonic generation[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2006, **23**(1): 51~55
- 2 Ildar A Begishev, Limitation of second-harmonic generation of femtosecond Ti: sapphire laser pulses[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004, **21**(2): 318~322
- 3 Ji Lailin, Zhu Jian, Ma Weixin *et al.*. Dual-Tripler Scheme for Third Harmonic Generation of Broad Bandwidth[J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(10): 1345~1348
季来林,朱 俭,马伟新等. 利用晶体串接实现宽带三次谐波转换[J]. 中国激光, 2006, **33**(10): 1345~1348
- 4 M. Aoyama, T. Harimoto, J. Ma, Y. Akahane *et al.*. Second-harmonic generation of Ultra-high intensity femtosecond pulses with a KDP crystal[J]. *Opt. Expr*, 2001, **9**(11): 579~585
- 5 Russell J. Gehr, Mark W. Kimmel, A. V. Smith, Simultaneous spatial and temporal walk-off compensation in frequency-doubling femtosecond pulses in β -BaB₂O₄[J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(16): 1298~1300
- 6 William J. Aford, Arlee V. Smith, Frequency-doubling broadband light in multiple crystals[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2001, **18**(4): 515~523
- 7 Jean Jacques Zondy, Dmitri Kolker, Christophe Bonnin *et al.*. Second-harmonic generation with monolithic walk-off-compensating periodic structures. II. Experiments[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(8): 1695~1707
- 8 Hu Wanyue, Wang Eryu, Li Wenxue *et al.*. Aberration-Free Stretcher Based on Concentric Diffraction for Sub-10fs 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
- 9 Han Wei, Zheng Wanguo, Yang Yisheng *et al.*. Second-Harmonic Generation at Retracting Point of Phase Matching With Pre-Chirp Compensation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(1): 133~137
韩 伟,郑万国,杨义胜等. 啁啾补偿的折返点匹配二倍频[J]. 光学学报, 2007, **27**(1): 133~137
- 10 Yao Jianquan, *Nonlinear optics frequency conversion and laser tuning technology* [M]. Beijing: Science Press, 1995
姚建铨,非线性光学频率转换及激光调谐技术[M]. 北京: 科学出版社, 1995
- 11 Lan Xinju. *Laser technology* [M]. Beijing: Science Press, 2000
蓝信钜. 激光技术[M]. 北京: 科学出版社 2000