

文章编号:1004-4213(2011)09-1376-5

飞秒激光泵浦 I 类 BBO 晶体中自发参量下转换的研究

尹娟娟, 俞侃, 包佳祺

(华中科技大学 文华学院, 武汉 430074)

摘 要:实验研究了飞秒脉冲激光泵浦 I 类 BBO 晶体中自发参量下转换效应, 以及产生的彩色锥形辐射现象. 系统分析了各参量对二次谐波转换效率及彩色锥形辐射现象的影响. 研究表明: 蓝绿色锥形辐射具有最大的发散角, 这与相位匹配理论模拟结果吻合; 正入射时, 增大泵浦光强及晶体厚度均会引起彩色锥形辐射亮度增加, 且最大出射角中心波长往长波移动; 不同光束偏振态下可依次观察到彩色锥形辐射、超连续现象.

关键词:自发参量下转换; 彩色锥形辐射; 相位匹配; 二次谐波

中图分类号: TN240

文献标识码: A

doi: 10. 3788/gzxb20114009. 1376

0 引言

1961 年, Louisell 等从理论上预言: 一个光子在穿过介质时, 会以很小但肯定不为零的概率分裂为两个光子, 这一过程满足能量守恒和动量守恒^[1]. 1967 年, Douglas Magde 等首次在实验上观察到自发参量转换现象^[2]. 自发参量转换效应是由于单色泵浦光子流和量子真空噪声对非中心对称介质的综合作用而产生的复杂非线性过程^[3]. 当高强度超短脉冲激光泵浦非线性晶体时, 将自发的产生频率上转换光和下转换光, 并在空间内形成彩色锥形辐射现象^[4]. 要获得高效率的自发参量转换效应必须满足一定的相位匹配条件. 采用晶体的双折射效应是满足相位匹配常用的方法. 吴昆等在 I 类相位匹配非线性晶体中观察到彩色锥形辐射 (Colored Conical Emission, CCE)^[5]. Özgün Süzer 等在 II 类相位匹配条件下获得了 CCE, 在高强度泵浦光下获得较高的参量转换效率^[6]. Yuexun Li 等研究了石英晶体中泵浦脉宽对锥形辐射光谱的影响^[7]. 自发参量下转换每一个入射光子泵浦非线性晶体时, 将以一定的概率自发地分裂为能量较低的双光子^[8]. 双光子不仅在偏振、时间、空间上具有高度纠缠特性^[9-11], 且具有较宽的光谱分布. 彩色锥形辐射现象不仅利用高度纠缠的光子开展纠缠交换技术、量子隐形态传输等量子信息领域的研究^[12-16]. 采用宽带的光谱特性用于可调谐振激光器和宽光谱遥感探

测仪等研究^[17-18].

本文在理论与实验上研究了自发参量下转换效应所产生的彩色锥形辐射现象. 首先从理论上模拟相位匹配下彩色锥形辐射角, 及泵浦光强对锥形辐射谱的影响. 其次通过实验系统分析泵浦光强、光束入射角、偏振方向及晶体厚度等参量的影响. 随着超快超强激光技术的发展, 在高强度超快脉冲作用下新的激光现象出现, 如彩色锥形辐射等现象, 这对于进一步理解激光与非线性介质相互作用, 探索其应用前景有重要的科学意义. 同时也是进一步研究超短脉冲高次谐波辐射得到超短波长的基础.

1 实验装置

实验装置示意图如图 1. 实验中所用的激光光源是 Spectra-Physics 公司的 Tsunami Spitfire Pro 飞秒激光设备. 该系统输出的中心波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz, 最大单脉冲能量为 1.5 mJ, 输出脉冲半高全宽为 45 fs. 图中两光阑用来对外光路进行准直定位, 以及调节光束尺寸. 半波片用来调节线

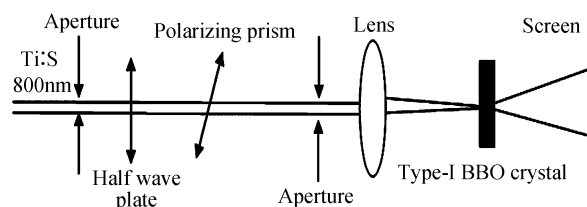


图 1 飞秒脉冲泵浦 I 类 BBO 晶体实验装置示意
Fig. 1 Schematic diagram of the experimental set-up

基金项目: 华中科技大学文华学院创新基金(No. J02005301)资助

第一作者: 尹娟娟(1984—), 女, 助教, 硕士, 主要研究方向为非线性光学. Email: juanjuan@yaho.com

通讯作者: 俞侃(1978—), 男, 讲师, 主要研究方向为光通信器件与子系统. Email: onlyfish@126.com

收稿日期: 2011-04-23; 修回日期: 2011-06-21

偏振光的偏振方向,与偏振棱镜对偏振光透光轴的方向进行选择结合,实现对脉冲能量的连续调节.

实验中,分别采用 2 mm 及 5 mm 厚的 BBO 晶体,且晶体的切割方向为沿 z 轴方向 29.18° . 800 nm 飞秒激光光束经焦距为 20 cm 的凸透镜聚焦到 BBO 晶体上,晶体与透镜焦点的距离可在 5 cm 范围内连续调节. BBO 晶体放置在 3 维显微调节平台上,可获得不同方向的入射角.

2 理论分析

飞秒脉冲激光泵浦非线性晶体时,在偏离轴向的位置形成彩色锥形辐射,如图 2. 产生 CCE 的物

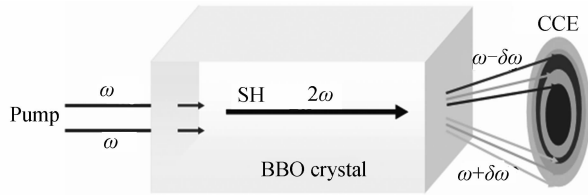


图 2 下转换光子对的产生

Fig. 2 On-axis SH photons decay into photon pairs at different frequencies $\omega \pm \delta\omega$

理本质是三光子过程^[4],可用式(1)中的耦合波方程表示其非线性过程

$$\begin{aligned} i \frac{\partial \mu_1}{\partial z} + \frac{\sigma_1}{2} \nabla_{\perp}^2 \mu_1 - \frac{\beta_1}{2} \frac{\partial \mu_1}{\partial t^2} + \mu_2 \mu_1^* &= 0 \\ i \frac{\partial \mu_2}{\partial z} + \frac{\sigma_2}{2} \nabla_{\perp}^2 \mu_2 + i\delta \frac{\partial \mu_2}{\partial t} - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 \mu_2}{\partial t^2} + \Delta k \mu_2 - \frac{\mu_1^2}{2} &= 0 \end{aligned} \quad (1)$$

式中 u_1, u_2 分别为倍频光与参量转换光强; $\sigma_m = k_1/k_m$, 其中 ($m = 1, 2$); β 是群速度色散, δ 为群速度失配, Δk 表征相位失配; 2ω 倍频光子演化为偏离轴向传输的频率为 $\omega \pm \delta\omega$ 的光子对,且满足能量与动量守恒条件^[14]

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i, k_p = k_s + k_i \quad (2)$$

其中 δ, ω 为频移量,各频率光子的传输方向由式(3)决定

$$\Delta k = k(2\omega) - k_z(\omega + \delta\omega) - k_z(\omega - \delta\omega) \quad (3)$$

由式(3)可知,同一频率成分以相同的发散角 θ_{\pm} 出射,如图 3.

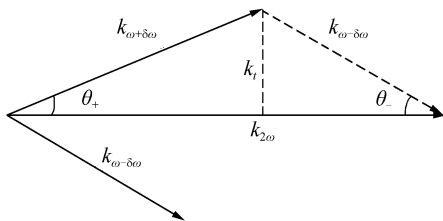


图 3 相位匹配条件

Fig. 3 The phase matching condition

$$\theta_{\pm} = \arcsin \left[\frac{k_i}{k(\omega \pm \delta\omega)} \right] \quad (4)$$

$$k_i = k^2(\omega + \delta\omega) -$$

$$\frac{[k^2(2\omega) + k^2(\omega + \delta\omega) - k^2(\omega - \delta\omega)]^2}{4k^2(2\omega)} \quad (5)$$

自发参量下转换光子与二次谐波满足相位匹配条件,同一频率成分以相同的发散角 θ_{\pm} 出射,从而形成不同颜色的辐射光,即 CCE.

使用 Matlab 模拟锥形辐射各颜色辐射环的发散角,如图 4. 由彩色锥形辐射环的出射角曲线图可以看到,在 400 ~ 800 nm 光波范围内,波长为 500 nm(蓝绿色)附近的频率成分在晶体内得到的发散角最大,约为 5° ,远离 500 nm 的光波出射角依次减小.

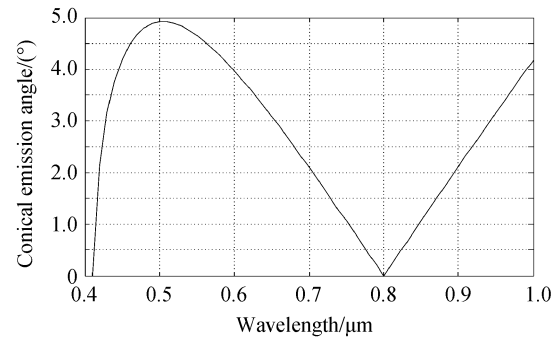


图 4 不同出射波长的锥形辐射角

Fig. 4 Conical emission angle of different wavelengths

实验中采用中心波长为 800 nm 的抽运光入射到晶体上形成 CCE,其物理本质可定性用多级的三光子过程:沿着轴向入射的频率为 ω 的泵浦光,经过非线性晶体后,部分转变成频率为 2ω 的倍频光. 由于泵浦强度很高,在晶体中发生了级联的倍频过程. 高强度的倍频光一部分参与到级联的倍频过程中去,更多的频率为 2ω 的泵浦光子则演化为偏离轴向传输的频率为 $\omega \pm \delta\omega$ 的光子对,且满足能量与动量守恒条件. 随着泵浦光不断的向前传输,越来越多的泵浦光经由倍频光后自发转化为 $\omega \pm \delta\omega$ 的光子对,并且在调制不稳定性的作用下获得指数增益,从而形成了彩色锥形辐射现象.

采用傅里叶-贝塞尔变换将坐标系变换成波矢-频率坐标系,从理论上分析其非线性产生过程. 由于噪音的影响,各种频率成分将被放大,增益系数 g 是时间频率 Ω 与空间频率 Ω_s 的函数形式.

$$g(\Omega, \Omega_s) = |\beta_2| [\Omega_s^2 - \text{sgn}(\beta_2) \Omega^2]^{1/2} \times [\text{sgn}(n_2) \Omega_c^2 + \text{sgn}(\beta_2) \Omega^2 - \Omega_s^2]^{1/2} \quad (6)$$

$$\Omega_c^2 = \frac{4|\gamma|}{|\beta_2|} = \frac{8\pi|n_2|I_0}{\lambda|\beta_2|} \quad (7)$$

式中 β_2 为群速度色散, n_2 为非线性折射率,而 $\Omega_c^2 \propto I_0$, 正比于入射光强. 以反常色散非线性介质为例,式(6)变为

$$g(\Omega, \Omega_s) = |\beta_2| [\Omega_s^2 + \Omega^2]^{1/2} \times [\Omega_c^2 - \Omega^2 - \Omega_s^2]^{1/2} \quad (8)$$

在空间与时间频率下,增益效率具有极大值及极小值.反常色散非线性介质中,增益归一化得到峰值增益 g_{\max} ,当 $\Omega_s^2 + \Omega^2 = \Omega_c^2$ 时,增益具有最大值

$$g_{\max} = \frac{|\beta_2| |\Omega_c^2|}{2} = \frac{4\pi |n_2| I_0}{\lambda} \quad (9)$$

由式(8)可知,增益为时间和空间的函数,呈对称性分布,从而证明了 CCE 呈轴对称分布.结合式(9)分析可知,CCE 最大出射角中心波长随泵浦光强增加往长波方向移动.

3 实验结果与分析

为了使二次谐波脉冲达到足够强度,调整 BBO 晶体与焦点的距离,保持蓝色谐波亮度最高.泵浦光强为 0.044 mJ/cm^2 ,聚焦后光束束腰约为 1.27 mm ,晶体距焦点 4.5 cm 时,光束正入射时在观察屏上获得了清晰的圆锥状分布的彩色辐射现象.锥形辐射沿着入射光的方向为轴呈轴对称分布,外环为明亮的蓝绿色环,在蓝绿色环内部的右下角出现红色的半月形的环,环的内部不同颜色光波叠加在中心区域形成圆形的白光.对于偏离轴向位置上出现的蓝绿色环,测得其中心波长约为 500 nm ,发散角约为 5.0° ,红色半环波长约为 700 nm ,其余波长出射角度以 500 nm 为中心依次减小,这与理论模拟相吻合.

为了验证实验中的彩色锥形辐射源于二次谐波的产生,分别改变了泵浦光的光强、激光束与 BBO 晶体的夹角、泵浦光偏振方向及 BBO 晶体的长度来观察彩色锥形辐射现象及光谱的变化.

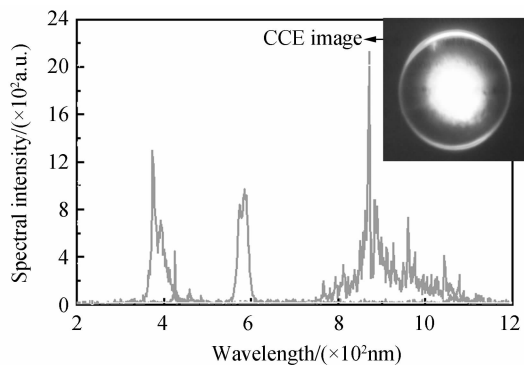


图 5 I 类匹配产生的彩色锥形辐射现象及其光谱图
Fig. 5 CCE image and its spectrum

3.1 泵浦光光强对彩色锥形辐射的影响

在以上获得的明亮的彩色圆锥辐射的基础上,保持各参量不变.缓慢改变泵浦光强,分别在 0.03 mJ/cm^2 、 0.038 mJ/cm^2 、 0.044 mJ/cm^2 ,且光束半径均相同,测试彩色锥形辐射的光谱及对应图像,如图 6.

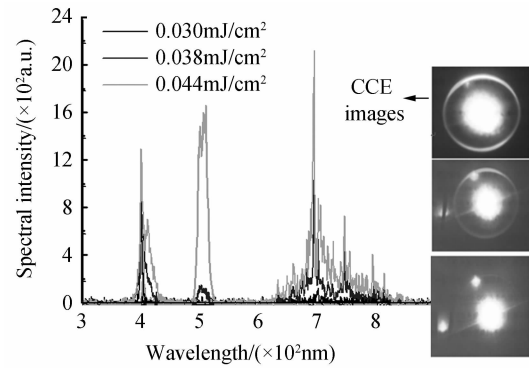


图 6 不同泵浦光强下光谱图及相应的 CCE 图像
Fig. 6 CCE spectra with different energies and the corresponding CCE images

从图 6 中可以看出,当泵浦光强为 0.038 mJ/cm^2 时,清晰可辨的彩色圆锥辐射开始出现.随泵浦光强逐渐增加,二次谐波转换效率增强,从而引起彩色锥状辐射亮度增强.这与增益效率随着泵浦光强增强而提高相吻合.同时,在蓝绿色环内部的右下角出现红色的半环.本实验中首先采用 800 nm 光源泵浦非线性 BBO 晶体获得倍频光,部分 800 nm 光波与自发参量下转换光波作用,时空耦合调制不稳定性导致了红色半环的产生.以上分析直观地证明了多色锥状辐射源于二次谐波的产生.

3.2 光束入射角对彩色锥形辐射的影响

缓慢调节三维显微旋转平台微调节旋钮,改变泵浦光束的入射角度获得的 CCE 光谱如图 7.

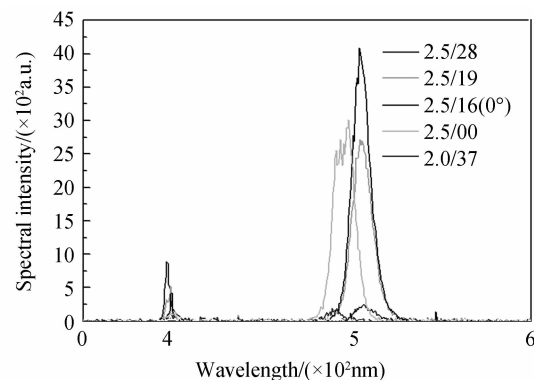


图 7 不同入射角度下 CCE 光谱图

Fig. 7 CCE image with different incident angles

当正入射(0°)时,蓝绿色锥形辐射强度最高.缓慢调节三维显微调节平台增大入射角,蓝绿色光处强度减小,下转换光中心波长呈现微小的改变.正入射的时,二次谐波因相位匹配而转换效率是最高的,当随着入射角的增大相位失配越严重,自发参量转换效率降低,从而引起彩色锥形辐射强度减小.

3.3 偏振方向对彩色锥形辐射的影响

为观察入射光的偏振方向对彩色锥形辐射的具体影响,在图 1 实验装置的基础上,在偏振棱镜后加

一半波片 2, 则可通过旋转半波片来改变入射光的偏振方向, 装置结构如图 8.

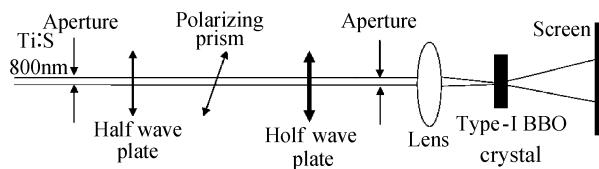


图 8 改变偏振入射方向的彩锥辐射实验示意

Fig. 8 Schematic diagram of the experimental set-up when the polarization direction is changed

适当调节各参量获得明亮的彩色辐射, 此时记录半波片的方向为 205° , 分别记录半波片在 160° 与 115° 方向角的图像, 如图 9. 已知半波片旋转约 45° , 则入射光的偏振方向改变 90° . 彩色锥形辐射亮度最强的时可认为二次谐波转换效率最高. 当通过旋转半波片改变入射光的偏振方向 90° 时, 此时入射光的偏振方向为 e 光的方向, 二次谐波的转换效率较低, 难以达到自发参量转换的要求, 故观察到明亮的超辐射现象. 以上分析也直观的表明彩色锥形辐射来源于二次谐波的产生.

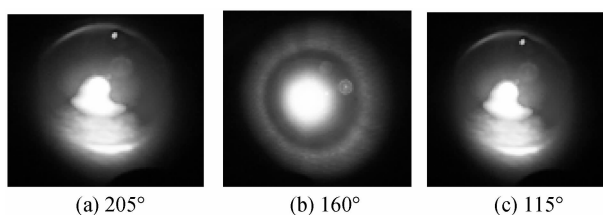


图 9 半波片角度分别为 205° 、 160° 和 115° 时对应的辐射图样

Fig. 9 CCE image with different polarization direction of 205° , 160° and 115° respectively

3.4 晶体长度对彩色锥形辐射的影响

为了观察晶体长度带来的影响, 采用飞秒激光分别泵浦厚度为 2.5 mm 及 5 mm 的 BBO 晶体来观察介质长度对 CCE 的影响.

从图 10 中可以看出, 晶体的厚度影响二次谐波的转换效率. 在一定的范围内, 晶体越厚, 二次谐波转换效率越高, 彩色锥形辐射现象越明显. 同时可以看出, 晶体越厚, 蓝绿色环的中心波长越长, 亮度越

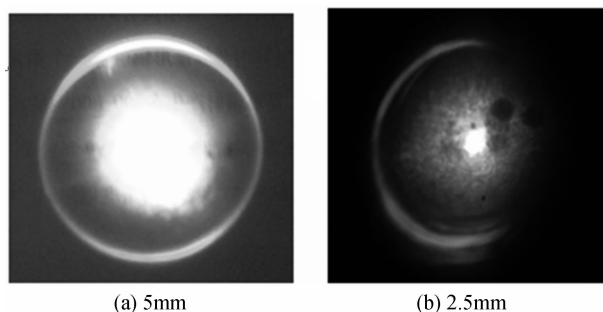


图 10 5 mm 和 2.5 mm 厚晶体锥形辐射图样

Fig. 10 CCE images with different crystal thicknesses of 5 mm and 2.5 mm

强. 已知二次谐波转换效率随晶体厚度增大, 因此, 自发参量转换效率越高, CCE 辐射较明显. 同时, 由于 CCE 最大出射角中心波长随泵浦光强增加往长波方向移动, 因此随晶体长度增加, 蓝绿色环中心波长变长.

4 结论

实验研究了 800 nm 超短脉冲激光泵浦 I 类非线性 BBO 晶体, 由于自发参量下转换产生的彩色锥形辐射现象. 光束正入射时, 随着泵浦光强的增强, 晶体厚度增加, 彩色锥形辐射的亮度增加; 增加泵浦功率, 增大晶体厚度及减小入射角度均出现最大出射角中心波长往长波移动的现象; 同时, 旋转入射光束的偏振方向, 不同光束的偏振态下可依次观察到彩色锥形辐射、超连续现象. 本文的分析也直接验证实验中的彩色锥形辐射源于二次谐波的产生.

参考文献

- [1] LOUISELL W H, YARIV A, SIEGMAN A E. Quantum fluctuations and noise in parametric processes I[J]. *Physical Review A*, 1961, **24**(6): 1646-1654.
- [2] MAGDE D, MAHR H. Study in ammonium dihydrogen phosphate of spontaneous parametric interaction tunable from 4400 to 16000 A[J]. *Physical Review Letters*, 1967, **18**(21): 905-907.
- [3] MA Xin-li. Review of experimentation study on spontaneous parametric down-conversion light field[J]. *Laser Technology*, 2003, **27**(6): 0526-0530.
马新莉. 自发参量下转换光场的实验研究进展综述[J]. *激光技术*, 2003, **27**(6): 0526-0530.
- [4] TRILLO S, CONTI C, TRAPANI P D, et al. Colored conical emission by means of second harmonic generation[J]. *Optics Letters*, 2002, **27**(16): 1451-1453.
- [5] WU Kun, WU Jian, XU Han, et al. Ultra short laser pulse up-conversion amplification based on modulation instability [J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **54**(8): 3749-3756.
吴昆, 吴健, 徐哈, 曾和平. 超短激光脉冲调制上转换放大[J]. *物理光学*, 2005, **54**(8): 3749-3756.
- [6] SUZER O, GOODSON T G. Does pump beam intensity affect the efficiency of spontaneous parametric down conversion[J]. *Optics Express*, 2008, **16**(25): 20166-20175.
- [7] LI Yue-xun, JI Zhong-gang, LIU Jiang-sheng, et al. Conical emission by femtosecond pulses with different spectral bandwidths[J]. *Optics Communications*, 2008, **281**(18): 4780-4783.
- [8] ZENG He-ping, WU Jian, XU Han, et al. Colored conical emission by means of second harmonic generation in a quadratically nonlinear medium[J]. *Physical Review Letters*, 2004, **92**(14): 1439031-1439034.
- [9] KWAIT P G, STEINBERG A M, CHIAO R Y. High visibility interference in a bell-inequality experiment for energy and time[J]. *Physical Review A*, 1993, **47**(4): 2472-2475.
- [10] RARITY J G, TAPSTER P R. Experimental violation of bell's inequality based on phase and momentum[J]. *Physical Review Letters*, 1990, **64**(21): 2465-2498.
- [11] GAO Shi-ming. Wavelength management method of telecommunication band polarization-entangled twin photons in periodically poled lithium niobate crystal [J]. *Acta*

- Photonica Sinica*, 2007, **36**(5): 820-824.
- [12] JENNEWEIN T. Quantum cryptography with entangled photons[J]. *Physical Review Letters*, 2000, **84**(20): 4729-4732.
- [13] BRIDA G, GENOVESE M, GRAMEGNA M, *et al.* Single photon detector calibration by means of conditional polarization rotation[J]. *JOSA B*, **22**(2): 488-492.
- [14] MARCIKIC I, TITTEL W. Long-distance teleportation of cubits at telecommunication wavelengths[J]. *Nature*, 2003, **421**(30): 509-513.
- [15] KUKLEWICZ C E, FIORENTINO M, MESSIN G, *et al.* High flux source of polarization entangled photons from a periodically poled KTiOPO4 parametric down converter[J]. *Physical Review A*, 2004, **69**(1): 013807.
- [16] LIU Junc-hang, LI Yuan-hua, NIE Yi-you. Controlled teleportation of an arbitrary two-particle state by using a four-qubit cluster state and entanglement swapping[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2010, **39**(11): 2078-2082.
刘俊昌, 李渊华, 聂义友. 基于纠缠交换和团簇态实现二粒子任意态的可控隐形传态[J]. 光子学报, 2010, **39**(11): 2078-2082.
- [17] GODARD A, RAYBAUT M, LAMBERT O, *et al.* Cross resonant optical parametric oscillators: study of and application to difference frequency generation[J]. *JOSA B*, 2005, **22**(9): 1966-1978.
- [18] LIU Da-qi, LIU Ding-quan, ZHANG Feng-shan. Control of polarization for the visible infrared broadband dichroic beamsplitter at oblique incidence[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2011, **40**(1): 5-8.
李大琪, 刘定权, 张凤山. 可见/红外宽光谱分色片偏振调控的设计[J]. 光子学报, 2011, **40**(1): 5-8.
- [19] TITTEL W, BRENDEL J, ZBINDEN H, *et al.* Quantum cryptography using entangled photons in energy-time bell states[J]. *Physical Review Letters*, 2000, **84**(20): 4737-4740.
- [20] LI Jian-jun, ZHENG Xiao-bing, FENG Yu, *et al.* The research of spontaneous parametric down-conversion and its application in the optics metrology [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2005, **42**(7): 2-7.
李建军, 郑小兵, 冯瑜, 等. 自发参量下转换的研究及其在光学计量中的应用[J]. 激光与光电子学进展, 2005, **42**(7): 2-7.

Spontaneous Parametric down Conversion in Type-I BBO Crystal Pumped by Femtosecond Pulses

YIN Juan-juan, YU Kan, BAO Jia-qi

(Wenhua College, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract: Spontaneous parametric down conversion of the femtosecond pulse with a type-I β -barium borate (BBO) crystal was studied experimentally, which induced to the generation of colored conical emission (CCE). The influence of parametrics on the conversion efficiency and the characteristics of CCE was discussed in detail. Experimental results show that the green conical emission has the biggest divergence angle, which is consistent with the calculation results based on the phase matching condition. When the pumped beam is incident on-axis, the intensity of the CCE will become stronger with the increase of the pump intensity and the thickness of crystal, and the center wavelength of the biggest diverging angle conical emission will change toward long wave. CCE and super-continuum emission can also be observed with different polarization directions.

Key words: Spontaneous parametric down conversion; Colored Conical Emission(CCE); Phase matching; Second harmonic wave