

飞秒脉冲测量过程的光路精确调节理论分析研究^{*}

申 淼^{1,2}, 夏彦文¹, 董 军¹, 张 波¹, 孙志红¹, 卢宗贵¹, 元浩宇¹

(1. 中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900; 2. 中国工程物理研究院 研究生院, 北京 100088)

摘 要: 针对单次飞秒激光脉冲波形的测量, 入射光夹角和晶体的偏转姿态是光路精确调节中的关键影响因素, 为了精确描述入射光夹角和晶体的偏转与输出自相关信号的关系, 我们对和频过程进行理论分析和推导。文中对入射光夹角的取值范围进行数学推导和计算, 并定量分析了输出的自相关信号与晶体的姿态的关系。结果表明, 要满足位相匹配条件, 入射夹角存在一个最小值为 30.114° ; 产生的自相关信号输出方向对晶体的转动姿态不敏感, 输出强度对参与耦合的两入射光束的夹角敏感; 对晶体的转动姿态容量较大, 且晶体越薄越不敏感; 自相关信号的时间分辨力由晶体内参与耦合的两入射光束的夹角决定, 改变晶体外的夹角不会改变时间分辨力。

关键词: 飞秒脉冲测量; 非线性光学; 光路调节; 晶体态势; 自相关信号

中图分类号: TN24

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB201931.190165

Theoretical analysis of optical path accurate adjustment in femtosecond pulse measurement process

Shen Miao^{1,2}, Xia Yanwen¹, Dong Jun¹, Zhang Bo¹, Sun Zhihong¹, Lu Zongui¹, Yuan Haoyu¹

(1. Research Center of Laser Fusion, CAEP, Mianyang 621900, China;

2. Graduate School of China Academy of Engineering Physics, Beijing 100088, China)

Abstract: For the measurement of single shot femtosecond laser pulse, to describe the influence of incident angle and crystal rotation on the output signal accurately, the third harmonic process is analyzed and deduced. In this article, the range of the angle of incident light is derived and calculated mathematically. At the same time, the relationship between the output autocorrelation signal and the crystal's attitude is analyzed quantitatively. The results show that, to satisfy the phase matching condition, the minimum value of the incident angle is 30.114° . The output direction of the autocorrelation signal is insensitive to the rotation of the crystal. However, the output intensity is sensitive to the intersection angle of two incident beams. The capacity of the crystal rotation is large, and the thinner the crystal is, the less sensitive it is. Moreover, the time resolution of the correlation signal is determined by the angle between the two incident beams in the crystal, the change of the angle outside the crystal does not change the time resolution. The study has reference value for the precise adjustment of femtosecond laser pulse measurements.

Key words: measurement of femtosecond laser pulse; nonlinear optics; optical path adjustment; attitude of crystal; autocorrelation signal

PACS: 42.65.-k

超短脉冲激光对人类研究各种超快现象起到了很大的作用, 因而对超短脉冲时间特性的测量是一项持久、必要且极具挑战性的任务^[1-2], 现有的测量方法都是利用不同的非线性技术^[3-4], 通过其自身, 把时间信号转换为空间信号进行测量, 包括自相关仪^[5]、强度三次相关仪^[6]、频率分辨光学开关法(FROG)^[7]、自参考光谱相位相干电场重构法(SPIDER)^[8]以及双延迟相关仪^[9]等, 而所有的这些方法、仪器都涉及到矢量的位相匹配问题。

在对非线性光学研究的初期, 人们就已经详细地研究了在共线标量位相匹配条件下晶体的质量、姿态、所处环境、内部光学参数以及切割方式等条件对二阶非线性效应的影响^[10-11]; 然而, 从测量学的角度来看, 我们更关心

* 收稿日期: 2019-05-18; 修订日期: 2019-09-07

基金项目: 国家自然科学基金项目(61377102); 国防基础科研计划项目(B1520133010)

作者简介: 申 淼(1995—), 男, 硕士研究生, 主要从事高功率激光参数诊断研究; miaoshen27@foxmail.com。

通信作者: 夏彦文(1972—), 男, 博士, 副研究员, 硕士生导师, 主要从事高功率激光参数诊断研究; xiayanwen1972@163.com。

这些条件对测量过程和测量结果的影响^[12]。就单次超短脉冲的测量,撇开光路的优化设计不谈,单就测量过程来说就涉及到了多个环节,比如等光程调节、晶体姿态调节、定标、衰减、杂光管理等,而准确地了解各个环节的核心关联要素是提高设备工作效率,保证测量结果准确性的关键。

本文针对单次激光脉冲时间特性测量中的和频过程,分析了参与和频的两光束夹角的变化,和频晶体姿态对输出的相关信号强度、方位的影响,为相关测量设备的精密调节提供技术支持。

1 分析模型

在单发次的超短脉冲测量中,一般采用将时间信号转换为空间信号进行测量,和频过程采用 90° 的 ooe 矢量匹配方式具有独特的优势。需要进行说明的是:矢量匹配方式不仅仅局限于本文所选用的方式,对于其他匹配方式,在二倍频和三倍频的过程中也同样适用,其主要区别在于过程中晶体的角度调整稍显不同。采用 90° ooe 矢量匹配方式在角度调整中较为方便。另外不论基频光为 1053 nm 还是 800 nm,影响的只是角度大小,其基本原理同样适用。典型的参与和频过程的三波波矢关系如图 1 所示。

图中 k_1, k_2 分别代表晶体外参与和频的两光束的波矢, k_3 代表产生的和频光束的波矢, α, β 分别为参与和频的两光束在晶体上的入射角, γ 为和频光的出射角,加一撇的对应字母则表示光波在晶体内部的相关参量(以图中标注的角度方向为正方向), d 表示晶体的厚度;在晶体中采用两套坐标系, xyz 坐标系用来描述光束的传输, $x'y'z'$ 为晶体的主轴坐标系,用来刻画光波的非线性转换效应;在图中, z' 轴为晶体的光轴,与 z 轴重合,且垂直于入射面, x 轴为晶体法线方向,所以 y 轴就是相关信号的空间变化方向, x' 与晶体表面(y 轴)成 ϕ 角度。这样,所涉及的光波在 $xy(x'y')$ 平面上完成耦合转换,优化设计时和频光沿 x 轴输出。

晶体内部由参与和频的两束光引起的极化波的波矢 k_p 满足 $k_p = k_1 + k_2$, 极化波激发出的和频光能否产生足以被探测器探测的相干累积效应很大程度上与相位失配量 $\Delta k \cdot l = (k_p - k_3) \cdot l$ 有关, l 为沿 k_p 方向的晶体长度。产生的和频光波满足如下方程

$$A_3(t, y) = C \chi_{\text{eff}} \int_0^l A_1(t, y, \mu l) A_2(t, y, \mu l) \exp(i \Delta k l) dl \approx C \chi_{\text{eff}} A_1(t, y) A_2(t, y) \frac{\sin(\Delta k l / 2)}{\Delta k} \quad (1)$$

式中: A_1, A_2 分别为参与和频的输入光波的慢变复振幅; A_3 为产生的和频光的慢变复振幅; t 为时间; C 为常数; A_1, A_2 为 t 与 y 的函数; 与 l (或 x) 的关系较弱,因此在 l 前面以无量纲的参数 μ 来表征; χ_{eff} 为有效非线性系数,具体数值与非线性晶体材料以及位相匹配方式相关。对于本文中的 KDP 晶体,按图 1 中 90° ooe 矢量匹配的设计,只需考虑在 xy 平面内参量 $E_z = 0$, 可求出 χ_{eff} 的表达式

$$P^{(2)} = d_{36} E_x E_y = d_{36} (E_{1x'} E_{2y'} + E_{2x'} E_{1y'}) \quad (2)$$

再结合图 1 中的关系可以推导出

$$P^{(2)} = d_{36} \sin(2\phi + \beta' - \alpha') E_1 E_2 \quad (3)$$

由此,可以得到所需要的 χ_{eff} 的表达式为

$$\chi_{\text{eff}} = d_{36} \sin(2\phi + \beta' - \alpha') \quad (4)$$

式中: d_{36} 为 KDP 晶体的二阶极化系数分量,如果选取 $\phi = 45^\circ$, 那么可得到输出的和频光强度

$$I_3(y) = \int_{-\infty}^{+\infty} |A_3(t, y)|^2 dt \propto \cos^2(\beta' - \alpha') \frac{\sin^2(\Delta k l)}{(\Delta k)^2} \quad (5)$$

因此,三倍频光强度 $I_3(y)$ 与晶体厚度 d , 晶体转角以及入射光波夹角 B 都有关。

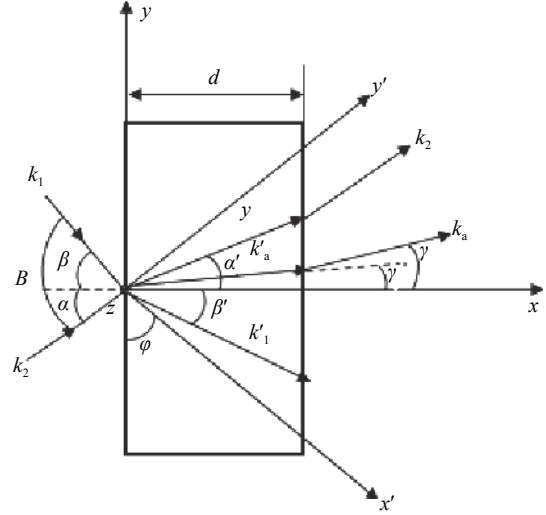


Fig. 1 Schematic diagram of each wave vector under 90° ooe vector matching

图 1 90° ooe 矢量匹配下各波矢示意图

2 结果讨论

在实际的晶体调节过程中涉及到两种情况：一是入射夹角 B 的容许偏差；二是选定夹角 B 之后，晶体的放置角度及转动余量。此外，有必要了解由此引起的三倍频的出射方向 γ 的偏离以及不同厚度晶体的影响。

首先讨论在满足相位匹配条件下，输出的三倍频光与入射角度之间的关系，如图 2 所示。

图中横坐标为三倍频输出折射角（晶体的放置角度），选取偏向剩余倍频光束方向为正，由图可知，当入射夹角 B 小于一定值的时候，无论如何转动晶体也无法实现位相匹配，最小夹角具体数值之后给出；由简单的几何关系可以得到

$$\sin \alpha = n_{o2} \sin \alpha' \quad (6)$$

$$\sin \beta = n_{o1} \sin \beta' \quad (7)$$

$$\tan \gamma = \frac{k_2 \sin \alpha' - k_1 \sin \beta'}{k_2 \cos \alpha' + k_1 \cos \beta'} \quad (8)$$

$$k_1 = \frac{2\pi}{\lambda_1} n_{o1} \quad (9)$$

$$k_2 = \frac{2\pi}{\lambda_2} n_{o2} \quad (10)$$

式中： n 分别代表不同入射光的折射率，取定 $\lambda_1=1053$ nm 为基频光， λ_2 为倍频光， λ_3 则为三倍频光，有 $\lambda_1 = 2\lambda_2$ ， $\lambda_1 = 3\lambda_3$ 。

又可知

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda_3} (n' - n_{e3}) = 0 \quad (11)$$

在位相匹配条件下， $\Delta k = 0$ ，联立式 (6)~(11)，整理可得到入射角之间的关系式

$$n_{o1}^2 \sin^2 \beta + n_{o2}^2 \sin^2 \alpha + 2A \sin \alpha \sin \beta = n_{o1}^2 n_{o2}^2 - A^2 > 0 \quad (12)$$

式中： $A = (9n_{e3}^2 - n_{o1}^2 - 4n_{o2}^2)/4$ 为大于 0 的常量，式 (12) 即为关于 $\sin \alpha$ ， $\sin \beta$ 的椭圆方程。如图 3 所示。

方程的解（同时满足条件 $|\sin \alpha| \leq 1$ ， $|\sin \beta| \leq 1$ ）分成两个分支，但实际上只能取椭圆的上半分支，因为下半分支实际上是反映了基频光与倍频光互换位置之后的结果，这时 $\sin \beta$ 是 $\sin \alpha$ 的单调下降函数，或者说 β 随 α 单调递减；在这个分支内，由于夹角 $B = \alpha + \beta$ ， B 的极值对应 $\partial \alpha / \partial \beta = -1$ ，代入式 (12) 可得

$$n_{o1}^2 \sin 2\beta - n_{o2}^2 \sin 2\alpha + 2A \sin(\alpha - \beta) = 0 \quad (13)$$

联立式 (12)~(13) 数值求解即可得到 $B_{\min} = 30.114^\circ$ ，由于只存在一个极限，因此在相同夹角 B ($B > B_{\min}$) 下，存在两个晶体放置角度（两个解 α, β ）满足位相匹配条件。如果 $B < B_{\min}$ ，则晶体内 $|k_3| < |k_p| = |k_1 + k_2|$ ，不会实现位相匹配。由于 $\partial \beta / \partial \alpha = -1$ 不满足 $2\sin \alpha = \sin \beta$ ，因此 $B = B_{\min}$ 时三倍频光不沿晶体法线 ($\gamma = 0$) 输出。

因此，在实际中的相关仪调试阶段，可以按如下方式搜寻相关信号：针对倍频光束，让参与倍频的两入射基频光束间的夹角 B 比 B_{\min} 稍大，然后左右转动晶体，这时存在两个角度相关信号最强，然后将夹角 B 逐步减小，同时左右转动晶体，直至只出现一次强度最大，这时相关信号输出最强且沿晶体法线方向输出；针对三倍频相关信号，让参与和频的两入射基频、倍频光束间的夹角 B 也比 B_{\min} 稍大，然后左右转动晶体，这时存在两个角度相关信号最强，然后将夹角 B 逐步减小，直至相关信号输出最强且沿晶体法线方向输出（这时一定存在另一个角度相关信号的强度与之相当）。

从图 2 中还可以看出，在小角度内，三倍频输出角度 γ 与倍频输入角度 α 几乎呈线性关系。为此，我们来看参

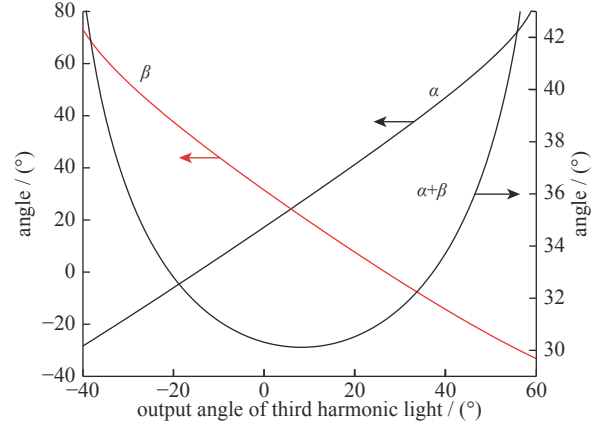


Fig. 2 Angle relation between the output third harmonic light and the incident light

图 2 输出三倍频光与入射光的角度关系

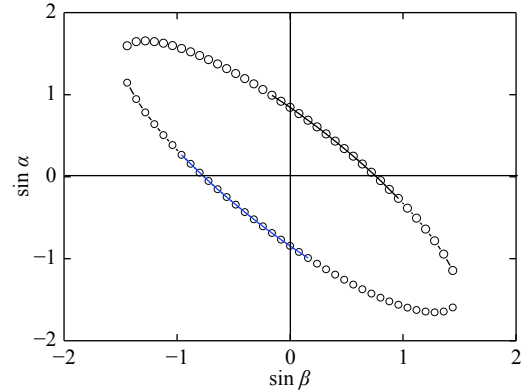


Fig. 3 Angle relation between incident lights

图 3 入射光之间的角度关系

与和频的两入射光束的夹角 B 固定的情况下(可能的)三倍频光的出射角 γ 与二倍频光入射角 α 的关系,如图 4 所示。

这里 B 在 B_{\min} 附近较小区间取值,晶体内产生的极化波满足位相匹配条件 $k_{3p} = k_1 + k_2$, 认为晶体内三倍频光波与极化波同方向。具体推导过程如下

$$\sin \gamma = n_{e(3\omega)} \sin \gamma' \tag{14}$$

$$\tan \gamma' = \frac{2 \sin \alpha - \sin \beta}{2n_{o(2\omega)} \cos \alpha' + n_{o(\omega)} \cos \beta} \tag{15}$$

在小角度近似的情况下,结合公式 (14) 和 (15), 可得

$$\gamma \approx n_{e(3\omega)} \gamma' \approx \frac{n_{e(3\omega)}}{3n_{3p(3\omega)}} (3\alpha - B) \approx \alpha - \frac{B}{3} \tag{16}$$

因此,可以得出结论:输出的三倍频光与输入倍频光之间的夹角 $\alpha - \gamma$ 近乎不变,且约为入射夹角的三分之一。对此结论,与实验所得结果相符,如图 5 所示。

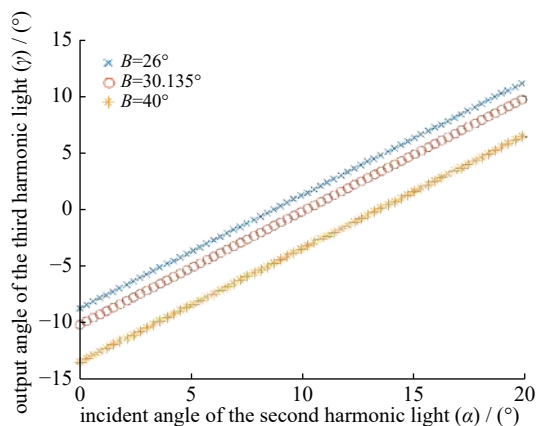


Fig. 4 Angle relation between input light and output light
图 4 输出三倍频光与入射二倍频光角度关系

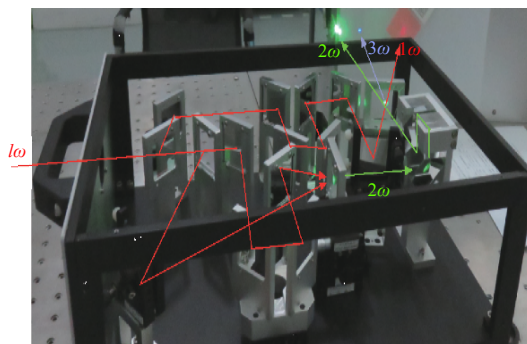


Fig. 5 Verification experiment result of third-order correlation signal acquisition
图 5 三阶相关信号获取验证实验图

因此,应用在单发次的相关仪调试阶段,一旦确定了基频、倍频光束间的夹角 B ,三倍频光束应该在 $1/3$ 角度处出现,通过与等光程延迟调节线联合使用,可以快速调节出三倍频相关信号,极大地减小了调节难度。

接下来讨论角度与输出三倍频强度之间的关系,分析在确定的不同的入射夹角 B 和晶体厚度 d 的情况下,改变二倍频光的入射角 α ,也就是等价于改变晶体的不同偏转姿态,对产生的三倍频光的光强的影响。结果如图 6 所示,图中给出了在固定入射夹角 B 以及晶体厚度 d 的情况下,旋转晶体获得的倍频入射角 α 与三倍频相对输出强度的关系,从图中可以看出,曲线类似多光束干涉产生的干涉环,夹角 B 类似光程差,晶体厚度 d 类似反射率:随着总入射角 B 的增大,在 α 的某个位置 α_0 (对应晶体内 $\beta = \alpha'$) 相对输出强度峰值逐渐增大,达到极限后分裂成近似等强度的双峰状态,并沿 α_0 两边对称扩展,同时每个峰值的宽度也逐渐变窄;晶体厚度 d 越小,峰值的宽度也越宽,两尖峰中间的“凹陷”也越浅,当然峰值的相对强度也越低。在 $B > B_{\min}$ 的不大的区域内,转动晶体获得的输出峰值强度只与晶体厚度有关,与 B 的取值无关。

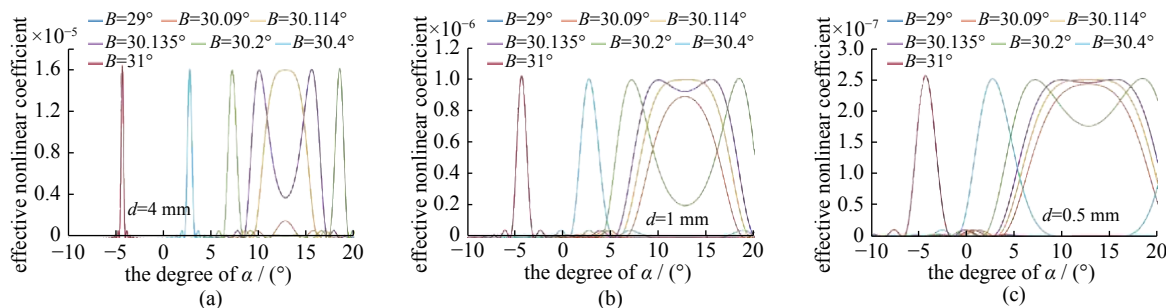


Fig. 6 Relationship between effective nonlinear coefficient and incident angle of second harmonic light
(a) $d=4$ mm, (b) $d=1$ mm, (c) $d=0.5$ mm

图 6 有效非线性系数与二倍频入射角的关系

接下来讨论比较特殊的情况下,输出光强与入射夹角之间的关系。首先讨论在出射的三倍频光沿晶体的法线方向输出时,这时的两入射光的夹角 $B=30.135^\circ$,大于能够取得的最小值 B_{\min} , $\alpha=9.94^\circ$ 。在这种情况下,从图6中可以看到,此时其对应曲线左边的一个尖峰,沿 α 减小的方向转动晶体的姿态,输出强度迅速下降;沿 α 增大的方向转动晶体姿态,强度首先下降(晶体越厚下降越快,甚至消失),然后在再增加进而达到第二个峰值,之后迅速消失。所以,在该情况下晶体的转动姿态并不是对称的。

而在 B 取极小值 $B=30.114^\circ$ 的时候,如前文所述对应的二倍频光入射角 α 只有唯一取值满足位相匹配条件,而此时对应的输出光强只存在一个峰值,且在尖峰的左右两边呈现近似的对称分布。

如果将入射夹角调到值 B_{\min} ,然后旋转晶体,这时由于满足位相匹配的 α 是单值,输出强度只出现一次尖峰,并沿尖峰对应的 α 近似呈对称分布,晶体越薄 α 的容量也越大(见图6(b)、(c))。

如果 $B < B_{\min}$,此时单峰出现在 $|\Delta k|_{\min}$ 处,输出的三倍频光强度会急剧下降,因此在 B_{\min} 两侧输出的三倍频光的行为是不对等的。

这完全可以用式(5)进行解释。由此可见,不同于皮秒脉冲,对于飞秒脉冲的测量(晶体较薄),产生的三倍频光对晶体的转动姿态并不敏感,但对入射夹角有极高的要求。

上面的讨论同样适用于相关信号是倍频光的情况,不同之处在于: $B=B_{\min}$ 时倍频光沿晶体法线 ($\gamma=0$) 输出,满足位相匹配条件的夹角 B 沿 $\gamma=0(B=B_{\min})$ 两边对称,倍频输出角 γ 与基频输入角 α 的线性关系较差, B 的细微的变化将会引起相关信号较大的角度漂移。

3 结 论

对于采用相关法的单发次超短脉冲测量,要满足位相匹配条件,入射夹角存在一个最小值;产生的相关信号输出方向对晶体的转动姿态不敏感,输出强度对参与耦合的两入射光束的夹角敏感;同时,对晶体的转动姿态容量较大,且晶体越薄越不敏感;相关信号的时间分辨力由晶体内参与耦合的两入射光束的夹角决定,改变晶体外的夹角不会改变时间分辨力。由于实际中相关仪经常需要针对不同的光源测量,此研究有助于实际系统的精确调节。另外,本文的主要结论与晶体种类和切割方式无关,其中的公式具有普适性,如果替换为 BBO 晶体也能同样满足,本文只是选择 KDP 晶体进行具体的讨论说明。

参考文献:

- [1] Shapiro S L. Ultrashort light pulse[M]. Berlin: Springer Verlag, 1977, 18: 83-101.
- [2] 翟华金. 超短光脉冲的测量[J]. 激光技术, 1993, 2: 114-119. (Zhai Huajin. Measurement of ultrashort optical pulse. Laser Technology, 1993, 2: 114-119)
- [3] Trebino R. Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulse[M]. Boston: Kluwer Academic Publishers, 2002.
- [4] Akhmanov S A, Dyakov Yu E, Chirkin A S. Introduction to statistical radio-physics and optics[M]. Nauka, Moscow, 1981.
- [5] Kim H N, Park S H, Kim K N, et al. The real-time temporal and spatial diagnostics of ultrashort high-power laser pulses using an all-reflective single-shot autocorrelator[J]. Journal of the Optical Society of Korea, 2014, 18(4): 382-387.
- [6] Wang Yongzhi, Ma Jingai, Wang Jing, et al. Single-shot measurement of $>10^{10}$ pulse contrast for ultra-high peak-power lasers[J]. Scientific Reports, 2014, 4: 3818.
- [7] Rhodes M, Steinmeyer G, Trebino R. Standards for ultrashort-laser-pulse-measurement techniques and their consideration for self referenced spectral interferometry[J]. Appl Opt, 2014, 53(16): D1.
- [8] Walid Tawfik. Precise measurement of ultrafast laser pulses using spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction[J]. Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials, 2015, 24: 1550040.
- [9] 夏彦文, 申淼, 孙志红, 等. 超短激光脉冲波形的单次测量技术[J]. 物理学报, 2017, 66: 044204. (Xia Yanwen, Shen Miao, Sun Zhihong, et al. Single shot measurement technique of ultrashort laser pulse waveform. Acta Physica Sinica, 2017, 66: 044204)
- [10] Maker P D, Terhune R W, Nisenoff M, et al. Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics[J]. Phys Rev Lett, 1962, 8(1): 21-23.
- [11] Dmitriev V G, Tarasov L V. Applied nonlinear optics: Second-harmonic generators and parametric light-generators[J]. Izdatel 'stvo Radio isviav', 1982:352.
- [12] 刘崇, 季来林, 朱宝强, 等. 高功率激光终端KDP晶体非共线高效三倍频及远场色分离方案数值模拟分析[J]. 物理学报, 2016, 65: 144202. (Liu Chong, Ji Lailin, Zhu Baoqiang, et al. Numerical simulation analysis of high efficient SFG and color separation in far field in high power laser facility based on noncollinear phase matching by KDP crystal. Acta Physica Sinica, 2016, 65: 144202)