

基于单晶体的可调谐参量超荧光的产生*

侯米娜^{1)†} 刘红军¹⁾ 赵 卫¹⁾ 王屹山¹⁾

1) 中国科学院西安光学精密机械研究所, 瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

(2007 年 1 月 12 日收到, 2007 年 2 月 2 日收到修改稿)

研究了一种基于单晶体的可调谐超荧光产生机理, 在一个偏硼酸钡(BBO)晶体中实现了飞秒脉冲倍频过程和光参量产生过程. 实验中采用 kHz 高功率钛宝石激光系统输出的飞秒脉冲光倍频后的蓝光作为抽运光, 获得了可调谐范围为 480—530 nm 参量超荧光光谱输出. 理论上分析了这种超荧光产生机理, 并利用放大传递函数模拟出参量超荧光环的产生过程. 结果表明, 在一个 BBO 晶体中, 当抽运光源输出光入射晶体角度同时满足倍频相位匹配角和非共线光参量产生相位匹配角时可产生参量超荧光环, 通过微调相位匹配角可控制参量超荧光光谱调谐输出. 该理论和实验研究为控制参量超荧光和量子纠缠态的产生提供了理论依据, 对于量子成像和量子通讯等领域的发展具有重要意义.

关键词: 光参量产生, 参量超荧光, 非共线相位匹配

PACC: 4265K, 4280, 4280W

1. 引 言

在光参量相互作用中, 非线性晶体中的量子噪声将作为信号光与抽运光进行参量作用, 放大的量子噪声通常称为参量超荧光^[1-3]. 早在 1961 年 Louise^[4]就从理论上预言了光参量荧光现象的出现, 并由 Magde 等人陆续观察到^[5-7]. 近十年来对于参量超荧光的研究不断深入. 1994 年 Cheung^[8]和 Karl 等^[9]研究了参量超荧光角度分布, 并利用参量超荧光功率计算得到二阶非线性光学系数 $d_{\text{eff}}^{[8,9]}$. 1995 年 Trapani 等^[10]证实, 在行波参量发生器中, 群速匹配决定了光参量产生(OPG)的超荧光角分布和谱分布. 2000 年 Devaux 等^[11]研究了第 I 类 LBO 晶体在简并状态下的参量荧光时空特性并通过建立放大传递函数(ATF)数值模拟出荧光光环很好得验证了实验现象. 2005 年马晶等^[12]利用第一块 BBO 晶体倍频后的蓝光(中心波长 405 nm)去抽运 I 类相位匹配的第二块 BBO 晶体, 得到可调谐范围为 471.2—733.3 nm 参量超荧光光谱输出, 证实了 Trapani 的群速自匹配理论, 并指出在飞秒光参量放大中, 信号光若沿光强最强的参量荧光方向选择相

应的非共线角和相位匹配角则可实现三波群速度失配最小. 参量超荧光强度角分布的研究对于 OPA 中三波群速失配的补偿, 高增益和窄脉冲宽度的参量光的产生以及在 OPCPA 方案中通过调整相位匹配角来控制参量超荧光的产生提供了理论依据^[13,14]. 此外近年来产生量子纠缠态普遍采用的方法是通过激光抽运非线性晶体的 OPG 过程^[15-18], 所以参量超荧光强度角分布的研究对于量子成像和量子通讯等领域的发展具有重要意义. 本文利用自行研制的 kHz 高功率钛宝石激光系统(中心波长在 800 nm, 带宽 37 nm, 脉冲宽度 40 fs, 脉冲能量 800 μJ)获得可调谐范围为 480—530 nm 参量超荧光光谱输出, 同时利用 BBO 晶体的放大传递函数(ATF)模拟出相位匹配角分别为 $\varphi = 29.2^\circ$ (抽运光波长 $\lambda_p = 400$ nm, 信号光波长 $\lambda_s = 800$ nm), $\varphi = 29.2^\circ$ ($\lambda_p = 400$ nm, $\lambda_s = 505$ nm)和 $\varphi = 29.5^\circ$ ($\lambda_p = 400$ nm, $\lambda_s = 545$ nm)时的参量超荧光产生过程. 研究结果表明, 在一个 BBO 晶体中, 当抽运光源输出光入射晶体角度同时满足倍频相位匹配角和非共线光参量产生相位匹配角时可产生参量超荧光环, 通过微调相位匹配角可控制参量超荧光光谱调谐输出.

* 国家自然科学基金(批准号: 60408002, 60678013, 60537060)和陕西省自然科学基金(批准号: 2004F02)资助的课题.

† E-mail: houmina@opt.ac.cn

2. 实验装置与实验原理

实验所用的抽运光源采用自行研制的 kHz 高功率钛宝石激光系统,该系统输出中心波长为 800 nm,重复频率为 1 kHz,带宽 37 nm(FWHM),脉冲宽度 40 fs,单脉冲能量最大为 800 μ J,本实验实际采用单脉冲能量为 110 μ J.实验中的二阶非线性介质采用厚度为 2 mm β -BBO 晶体(第 I 类相位匹配,29.2°切割角).实验装置如图 1 所示,钛宝石激光系统输出光经过焦距为 55 cm 透镜后垂直入射 I 类相位匹配的 BBO 晶体.

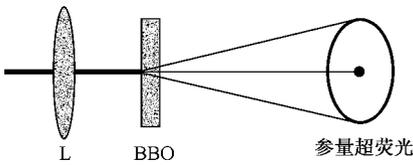


图 1 产生参量超荧光的实验装置 L 物镜, BBO 非线性晶体

由抽运光源参数(中心波长为 800 nm,脉冲宽度 40 fs)计算得到 BBO 晶体的倍频群速度失配量为 180 fs/mm,谐波脉冲与基波脉冲的时间分离长度为 220 μ m,即在晶体内前 220 μ m 发生倍频,倍频后中心波长为 400 nm 的光作为抽运光与满足相位匹配角的量子噪声在剩余晶体内发生光参量作用.抽运光源输出光在 BBO 晶体中倍频后沿竖直方向偏振(e 光)与水平方向偏振的量子噪声(o 光)满足第 I 类非共线相位匹配条件.在最佳相位匹配角 29.2°条件下,抽运光与中心波长为 505 nm 的量子噪声在晶体内部竖直面内夹角为 2.966°,通过微调晶体的相位匹配角来实现参量超荧光的可调谐波长输出.

光参量相互作用作为三波耦合非线性过程必须满足能量守恒和动量守恒,即

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i, \quad (1)$$

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

其中 ω 为角频率, k 为波矢,下标 p, s, i 分别代表抽运光、信号光和闲频光.

在非线性晶体中倍频后的抽运光 e 光光波的波矢方向与能流传播方向不同而存在空间分离角,造

成了抽运光同信号光、闲频光在空间上的走离,影响了耦合效率.同时由群速失配和时间分离长度 l 定义可知^[10]

$$l_j = \frac{\tau}{(1/\nu_j - 1/\nu_p)}, \quad j = i, s \quad (3)$$

其中 τ 为抽运光的脉宽, ν 是光波在晶体中的群速度, p 代表抽运光, j 分别代表信号光(s)和闲频光(i).为了使三波在传播过程中不完全分开,参量过程仍能继续,应取时间分离长度 l 为信号光和闲频光与抽运光之间的时间分离长度 l_s, l_i 之中最小的一个.对于超短光脉冲而言(当 l_s, l_i 均小于晶体长度时),由于群速失配造成信号光(闲频光)脉冲与抽运光脉冲在时间上的走离将影响参量转换效率.所以采用非共线匹配方式,通过选择合适的非共线角,在满足相位匹配的同时又满足群速匹配,而且可以大大降低空间走离的影响.文献[19]得到 BBO 晶体的非共线相位匹配方案如图 2 所示.信号光、闲频光与抽运光的夹角分别为 α, β ,将 k_s, k_i 分别投影到 X、Z 轴方向上,则相位匹配条件的波矢表达式 $k_p = k_s + k_i$ 可写为

$$\begin{cases} \Delta k_z = k_p - k_s \cos \alpha - k_i \cos \beta = 0, \\ \Delta k_x = k_s \sin \alpha - k_i \sin \beta = 0, \end{cases} \quad (4)$$

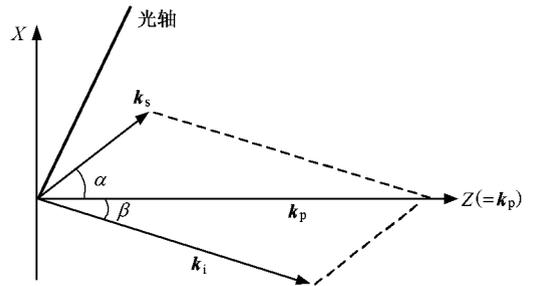


图 2 在 BBO 晶体中非共线相位匹配方案示意图

由(1)–(4)式可得到 BBO 晶体在第 I 类相位匹配条件(e \rightarrow o+o)下的相位匹配角表达式(5)^[20],结合负单轴晶体第 I 类匹配时的倍频相位匹配角公式(6)^[21]得到关于 BBO 晶体(第 I 类相位匹配条件)倍频对应的相位匹配角与基波波长的对应关系(虚线)以及中心波长为 505 nm 和 520 nm 的信号光相对基波的宽带非共线参量放大最佳相位匹配角走向(见图 3).

$$\sin \theta = \frac{n_o(\lambda_p)}{n_o(\lambda_s) \cos \alpha + n_o(\lambda_i) \cos \beta} \times \left\{ \frac{n_o^2(\lambda_p) - [n_o(\lambda_s) \cos \alpha + n_o(\lambda_i) \cos \beta]^2}{n_o^2(\lambda_p) - n_e^2(\lambda_p)} \right\}^{1/2}, \quad (5)$$

其中

$$\beta = \arcsin \left[\frac{n_o(\lambda_s)}{n_o(\lambda_i)} \sin \alpha \right],$$

$$\theta^{\text{真}} = \arcsin \left[\left(\frac{n_e^{2\omega}}{n_o} \right)^2 \frac{(n_o^{2\omega})^2 - (n_o^\omega)^2}{(n_o^{2\omega})^2 - (n_e^{2\omega})^2} \right]^{1/2}. \quad (6)$$

如图 3 所示,中心波长为 800 nm 光倍频时的相位匹配角 $\varphi = 29.2^\circ$,同时满足参量放大中心波长为 505 nm 信号光的最佳非共线光参量放大相位匹配角.此时相位匹配角、非共线角满足 $\nu_s = \nu_i \cos(\alpha + \beta)$ 群速匹配条件,保证了在中心波长处有宽的参量放大带宽以及高的光参量转换效率.由图 4 可以直观得出这样的结论,当非共线角 $\alpha = 2.966^\circ$ 时,中心波长为 400 nm 的光抽运中心波长为 505 nm 的信号光时的相位匹配角(即 $\varphi = 29.2^\circ$)处于曲线的拐点处,微调相位匹配角 $\varphi = 29.2^\circ - 30^\circ$ 可获得中心波长在 475—600 nm 范围调谐参量超荧光输出;在相位失配量的允许范围 $|\Delta kL/\pi| \leq 1$ 内^[22],计算得到参量放大的光谱带宽最宽达到 26 nm(FWHM).

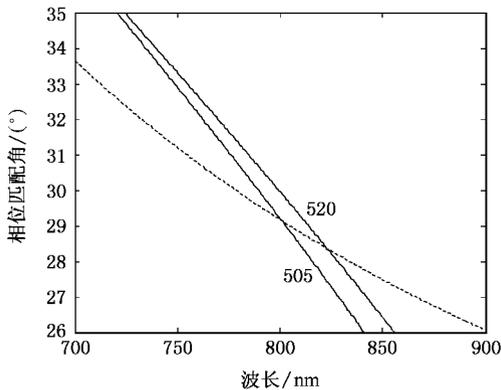


图 3 BBO(第 I 类相位匹配)倍频对应的相位匹配角与基波的对对应关系(虚线)实线分别代表中心波长为 505 nm、520 nm 信号光相对基波的宽带非共线参量放大最佳相位匹配角走向

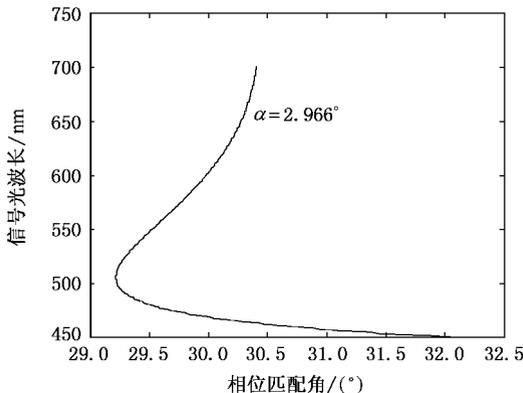


图 4 $\alpha = 2.966^\circ$ 时,中心波长 400 nm 光抽运下的参量放大信号光波长与相位匹配角对应关系

3. 实验结果

参量超荧光在空间上呈圆锥体分布,若观测屏垂直抽运光的传播方向放置,在屏上可观察到关于抽运光中心对称的圆环,即参量超荧光光环.利用高功率钛宝石放大激光系统输出的(1 kHz, 800 nm, 40 fs, 110 μ J)光垂直入射 I 类相位匹配的 BBO 晶体,我们得到参量超荧光光环照片.如图 5 所示,位于中心的亮斑为抽运光,其中一部分是中心波长为 800 nm 光发生倍频作用产生的中心波长为 400 nm 的倍频光.在偏离轴向的位置上可以清楚观察到以轴向为圆心的蓝绿色参量超荧光光环,其中心波长为 505 nm,空气中发散角约 5° ,光谱带宽达到 25 nm(FWHM).由图 6 可见,旋转 BBO 晶体角度(即微调相位匹配角)将会改变参量超荧光光谱的中心波长,并且相位匹配角旋转到一定角度时,荧光光环随即消失.最后可获得调谐范围为 480—530 nm 的参量超荧光光谱输出.

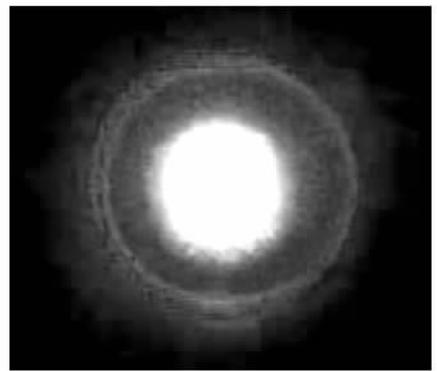


图 5 参量超荧光光环照片($\lambda_p = 800$ nm, $\varphi = 29.2^\circ$)

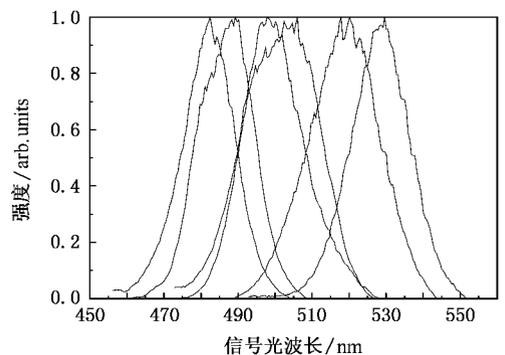


图 6 微调相位匹配角得到的可调谐参量超荧光光谱

4. 数值模拟与理论分析

在光参量相互作用中, 满足准相位匹配 (QPM) 条件的光子得到放大并令单模式单光子注入晶体 ($\varphi_m, \theta_m, \lambda_m$) 参量放大后可产生参量超荧光的一种模式, 则产生参量超荧光第 m 个模式下的 ATF 为^[11]

$$\begin{aligned} \text{ATF}(\varphi_m, \theta_m, \lambda_m) &= \frac{\mathcal{G}(\varphi_m, \theta_m, \lambda_m)}{G_0} \\ &= \frac{(\gamma \Gamma)^2}{G_0}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中

$$\gamma = \frac{g}{K} \begin{cases} g > \frac{\Delta k}{2}, K = \sqrt{g^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2}, \\ \Gamma = \sinh(KL), \\ g \leq \frac{\Delta k}{2}, K = \sqrt{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 - g^2}, \\ \Gamma = \sin(KL), \end{cases}$$

参量增益 $g = 4\pi d_{\text{eff}} \sqrt{I_p} \sqrt{2\epsilon_0 n_{mp} n_{ms} n_{mi} c \lambda_{ms} \lambda_{mi}}$,

相位失配量 $\Delta k = |\Delta k| = |k_p - k_{ms} - k_{mi}|$,

G_0 为非简并状态下满足最佳相位匹配条件时增益, $\mathcal{G}(\varphi_m, \theta_m, \lambda_m)$ 表示非简并状态下在相位失配下第 m 个模式的增益. Z 为晶体光轴, 角度 φ 表示相位匹配角, θ 描述了相对 Y 轴方向的波矢 k_m 的传播方向. L 为晶体长度, I_p 为抽运光光强, c 为光速, ϵ_0 为介电常数, d_{eff} 为有效非线性系数, n_{mp}, n_{ms} 和 n_{mi} 分别代表第 m 个模式下抽运光、信号光和闲频光的折射率.

根据建立的 ATF 模拟满足第 I 类 BBO 晶体在非简并状态下参量超荧光环的产生. 如图 7 所示, 令

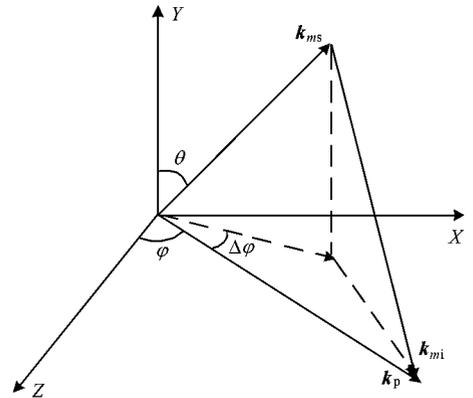


图 7 非共线相位匹配下的相位失配波矢关系 Z 为晶体光轴, 抽运光波矢在 BBO 晶体平面 (XZ) 上

抽运光波矢在 BBO 晶体平面 (XZ) 上 ($\theta_p = 90^\circ$), 相位失配量为

$$|\Delta k| = |k_p - k_{ms}A - k_{mi}B|,$$

其中

$$A = \sin\theta \cos\Delta\varphi,$$

$$B = \sqrt{1 - \left(\frac{k_{ms} \sqrt{1 - (\sin\theta \cos\Delta\varphi)^2}}{k_{mi}}\right)^2}.$$

将 Δk 代入 (7) 式即可得到在简并状态下和非简并状态下参量超荧光的产生过程 (见灰度图 8): 相位匹配角 $\varphi = 29.2^\circ$, 当 $\lambda_s = 2\lambda_p = 800 \text{ nm}$ 时, 参量超荧光在抽运光的传播方向上为一个明亮的光斑; 而当 $\lambda_p = 400 \text{ nm}$ 抽运 $\lambda_s = 505 \text{ nm}$ 时, 参量超荧光由光斑演变为空气中发散角约 5° 的超荧光环, 微调相位匹配角 $\varphi = 29.5^\circ$ 时, 满足中心波长 400 nm 光抽运下的另一波长 $\lambda_s = 545 \text{ nm}$ 同样被参量放大产生空气中发散角约 5° 的超荧光环 (图 8 (b)) 中位置偏上的光环).

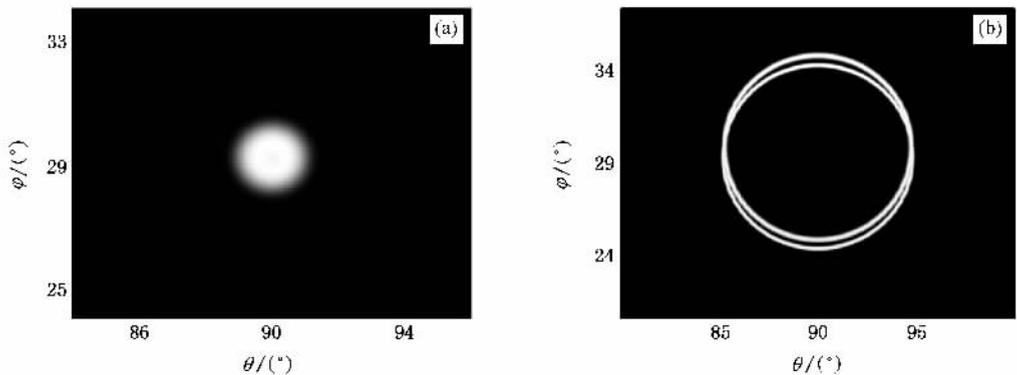


图 8 (a) $\varphi = 29.2^\circ$ ($\lambda_p = 400 \text{ nm}, \lambda_s = 800 \text{ nm}$) (b) $\varphi = 29.2^\circ$ ($\lambda_p = 400 \text{ nm}, \lambda_s = 505 \text{ nm}$) 以及 $\varphi = 29.5^\circ$ ($\lambda_p = 400 \text{ nm}, \lambda_s = 545 \text{ nm}$) 光参量超荧光灰度图 抽运光波矢在 BBO 晶体 (XZ) 平面上

考虑到抽运光源输出光是飞秒宽带光脉冲,倍频相位匹配角 $\varphi = 29.2^\circ$ 只是对于中心波长而言.从文献[23]可知,倍频效率是关于 $\sin^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)$ 的函数,当旋转晶体改变相位匹配角时,邻近频率的相位失配量 Δk 使倍频效率很快下降将严重影响此后参量放大效率,所以相位匹配微调到一定角度时,荧光光环很快消失,实际得到的参量超荧光调谐范围为 480—530 nm.

5. 结 论

本文研究了一种基于单晶体的可调谐超荧光产生机理.在一个 BBO 晶体中实现了飞秒脉冲倍频过

程和光参量产生过程,获得可调谐范围为 480—530 nm 参量超荧光光谱输出.理论上分析了这种超荧光产生的机理并利用放大传递函数模拟出光参量超荧光产生过程,很好地证实了实验结果.结果表明,在一个 BBO 晶体中,当抽运光源输出光入射晶体角度同时满足倍频相位匹配角和非共线光参量产生相位匹配角时可产生参量超荧光环,通过微调相位匹配角可控制参量超荧光光谱调谐输出.参量超荧光强度角分布的研究对于 OPA 中三波群速失配的补偿,高增益和窄脉冲宽度的参量光的产生以及对于 OPCPA 中参量超荧光的控制提供了理论依据,并且对于近年来量子成像和量子通讯等领域关注的纠缠光场的产生具有非常重要的意义.

- [1] Giallorenzi T G, Tang C L 1968 *Phys. Rev.* **166** 225
- [2] Kleinman D A 1968 *Phys. Rev.* **174** 1027
- [3] Tang C L 1975 *Quantum electronics: A treatise*. (New York: Academic Press) p419
- [4] Louisell W, Yariv A, Siegman A E 1961 *Phys. Rev.* **124** 1646
- [5] Magde D, Mahr H 1967 *Phys. Rev. Lett.* **18** 905
- [6] Haris S, Oshman M K, Byer R L 1967 *Phys. Rev. Lett.* **18** 732
- [7] Pearson J E, Yariv A, Ganiel U 1973 *Appl. Opt.* **12** 1165
- [8] Cheung E C, Koch K, Moore G T 1994 *opt. Lett.* **19** 168
- [9] Koch K, Cheung E C, Moore G T *et al* 1995 *Quantum electron.* **31** 769
- [10] Trapani P D, Andreoni A, Banfi G P *et al* 1995 *Phys. Rev. A* **51** 3164
- [11] Devaux F, Lantz E 2000 *Eur. Phys. J. D* **8** 117
- [12] Ma J, Zhang R B, Liu B *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4765 (in Chinese)[马晶、章若冰、刘博等 2005 物理学报 **54** 4765]
- [13] Zhao W, Liu H J, Wang Y S, Wang H Y *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 359
- [14] Liu H J, Chen G F, Zhao W *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1717 (in Chinese)[刘红军、陈国夫、赵卫等 2001 物理学报 **50** 1717]
- [15] Bouwmeester D, Pan J W, Mattle K *et al* 1998 *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **356** 1733
- [16] Angelo M D, Chekhova M V, Shih Y 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 013602
- [17] Altman A R, Köprülü K G, Comdorf E *et al* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 123601
- [18] Jia X J, Su X L, Pan Q *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2717 (in Chinese)[贾晓军、苏晓龙、潘庆等 2005 物理学报 **54** 2717]
- [19] Liu H J, Zhao W, Yang Y *et al* 2006 *Appl. Phys. B* **82** 585
- [20] Liu H J, Chen G F, Zhao W *et al* 2001 *Opt. Commun.* **197** 507
- [21] Shi S X, Chen G F, Zhao W, Liu J F 2003 *Nonlinear Optics*(Xi'an: Xidian University Press) p98 (in Chinese)[石顺祥、陈国夫、赵卫、刘继芳 2003 非线性光学(西安:西安电子科技大学出版社)第 98 页]
- [22] Xia J F, Wei Z Y, Zhang J 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 256 (in Chinese)[夏江帆、魏志义、张杰 2000 物理学报 **49** 256]
- [23] Yao J Q 1995 *Nonlinear optics frequency changing and laser tuning technology*(Beijing: Science Press) p73 (in Chinese)[姚建铨 1995 非线性光学频率变换及激光调谐技术(北京:科学出版社)第 73 页]

Tunable parametric fluorescence using a single crystal^{*}

Hou Mi-Na^{1,2,†} Liu Hong-Jun¹⁾ Zhao Wei¹⁾ Wang Yi-shan¹⁾

¹ *State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Science, Xi'an 710119, China*

² *Graduate School of Chinese Academy of Science, Beijing 100039, China*

(Received 12 January 2007; revised manuscript received 2 February 2007)

Abstract

In this paper, we investigate the mechanism of tunable parametric superfluorescence (PS) based on the second harmonic generation and parametric processes taking place in the same nonlinear crystal (BBO). The tunable spectra of PS has been generated between 480 nm and 530 nm, which is pumped by the second-harmonic from the high-power Ti:sapphire laser system at 1 kHz repetition rate. We present the generation mechanism of PS theoretically and simulate the process of PS ring using the amplification transfer function. The experiment and the theory show that PS will appear when the phase matching angle for second-harmonic generation is close to the optimal pump angle for optical parametric generation, and then the tunable spectra of PS are generated by slightly adjusting the crystal angle. The result provides a theoretical basis for controlling the generation of PS and quantum entanglement states, which is of great significance for the development of quantum imaging, quantum communications and other applications.

Keywords : optical parametric generation, parametric fluorescence, nonlinear phase matching

PACC : 4265K, 4280, 4280W

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60408002, 60678013, 60537060) and the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2004F02).

[†] E-mail: houmina@opt.ac.cn