

在固体透明材料中利用级联四波混频方法获得 宽带多色飞秒激光脉冲的研究*

刘奇福¹⁾ 李方家¹⁾²⁾ 刘军^{1)†}

1)(中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光国家重点实验室, 上海 201800)

2)(同济大学物理科学与技术学院精密光学工程技术研究所先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092)

(2013年10月24日收到; 2014年1月2日收到修改稿)

飞秒激光光谱学实验研究的深入与拓展对飞秒激光脉冲的要求也越来越高. 比如多色抽运探测实验需要同时用到多个不同频率的超短飞秒激光脉冲. 本文设计了一个更加简单紧凑的实验装置, 对两束不同中心频率的入射光引入相反啁啾, 在厚度为0.5 mm的CaF₂晶体中利用级联四波混频获得了光谱半高全宽近100 nm, 支持傅里叶转换极限脉宽小于10 fs的多色飞秒激光脉冲. 这一结果将为拓展飞秒激光光谱学研究和应用发挥重要作用.

关键词: 多色飞秒激光, 级联四波混频, 傅里叶转换极限脉宽

PACS: 42.65.-k, 42.65.ky, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.63.094209

1 引言

近年来, 随着飞秒超短激光脉冲在光化学、光物理学和光生物学等研究领域应用的深入与拓展, 对飞秒激光脉冲的要求越来越高. 基于现有的商用飞秒激光器, 采用飞秒四波混频方法来拓展获得更长和更短波长的超短飞秒激光的研究是飞秒激光技术领域的一个热点. 比如, 2007年Fuji小组利用钛宝石飞秒激光输出的800 nm基频光与其倍频光在光丝中四波混频, 获得了中心波长为270 nm、脉宽为12 fs的深紫外激光脉冲和中红外波长(2.5—5.5 μm)的周期量级飞秒激光脉冲^[1,2]. 2008年, 李伟小组利用钛宝石激光器输出的飞秒激光脉冲, 在微结构光纤包层的次芯中参量四波混频, 获得了480—550 nm反斯托克斯光波^[3]. 2010年, Kida等利用充气空心光纤展宽种子光光谱, 并在充气空心光纤中四波混频, 获得了脉宽小于10 fs的深紫外激光脉冲^[4]. 2013年, Ghotbi等将钛宝石

飞秒激光输出的800 nm基频光一部分三倍频, 另外一部分作为光参量放大的抽运光获得放大的近红外光, 利用三倍频光和放大的近红外光在惰性气体中非共线四波混频, 获得了脉宽小于45 fs、中心波长在146—151 nm之间可调的真空紫外激光脉冲^[5]. 最近, 随着飞秒激光光谱学和飞秒非线性光学显微成像的发展, 越来越多的实验研究需要同时用到多个不同频率的飞秒激光脉冲^[6-8]. 其中一个获得多色飞秒激光的方法就是在固体透明光学介质中利用级联四波混频产生多个不同频率的飞秒激光脉冲. 最早在2000年, Crespo等利用玻璃片中的级联四波混频, 首次产生了从近红外到紫外光谱范围的不同级次的多色飞秒激光脉冲^[9]. 2009年, Liu等对于这一方法和产生的多色飞秒激光性能进行了详细的研究^[10-13]. 他们通过在级联四波混频的两束入射光中引入适量的正负啁啾, 获得了脉宽接近傅里叶转换极限, 且小于20 fs的一级和二级频率上转换飞秒激光脉冲. 2013年, Liu等通过两束注入光在0.1 mm的BBO晶体中级联四波混频,

* 国家自然科学基金(批准号: 61178006, 11274327, 61221064)、上海市浦江人才计划(批准号: 12PJ1409300)和国家青年千人计划资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jliu@siom.ac.cn

获得了光谱带宽支持傅里叶转换极限脉宽小于 15 fs 的多色飞秒激光脉冲^[14]. 这些多色飞秒激光也已经应用到了飞秒受激拉曼散射这一飞秒激光光谱技术上面^[15]. 光化学、光物理学和光生物学研究领域的深入和拓展对飞秒激光脉冲提出了更高的要求, 需要更高能量更短脉宽的飞秒激光脉冲^[16], 因此研究在固体透明光学介质中级联四波混频获得超宽带多色飞秒激光脉冲是非常必要的.

本文通过设计一个更加简单紧凑的实验装置, 并且在两束入射光中分别引入适量的正(负)啁啾, 我们在一片 0.5 mm 厚的 CaF₂ 晶体中, 获得了转换极限脉宽更短的超宽带多色飞秒激光. 其中, 一级和二级频率上转换信号光的光谱半高全宽近 100 nm, 可以支持小于 10 fs 的转换极限脉冲宽度, 二级以上的另外五个级次的频率上转换信号光的光谱带宽可以支持小于 16 fs 的傅里叶转换极限脉冲宽度. 这些同时获得的, 中心频率可调的超宽带多色飞秒激光脉冲将在拓展飞秒激光光谱学研究和应用中发挥重要作用, 促进飞秒激光光谱学和飞秒非线性光学显微成像的发展.

2 实验原理

2.1 级联四波混频原理

级联四波混频, 顾名思义就是级联的四波混频过程. 首先, 种子光和抽运光相互作用产生一级频

率上转换或下转换信号光, 产生的一级信号光接着与种子光和抽运光四波混频产生二级信号光, 以此类推. 在这些光子相互作用过程中始终满足能量守恒和动量守恒原理, 从而参与四波混频的三个光波之间很好的达到了相位匹配, 原理如图 1 所示^[17].

$$\omega_{A_{sm}} = (m + 1)\omega_1 - m\omega_2, \quad (1)$$

$$k_{A_{sm}} = (m + 1)k_1 - mk_2, \quad (2)$$

其中, $\omega_1, \omega_2, \omega_{A_{sm}}, k_1, k_2, k_{A_{sm}}$ 分别为种子光、抽运光和第 m 级频率上转换信号光的角频率和波矢.

2.2 傅里叶转换极限脉冲获得原理

当一个脉冲的时域相位因子 $\phi(t)$ 与其中心频率为线性关系时, 此时脉冲即为傅里叶转换极限脉冲. 由此可知, 为了获得傅里叶转换极限脉冲, 则应使 $\phi(t)$ 对时间的二阶导数为零.

在满足相位匹配的情况下, 抽运光、种子光和第 m 级信号光的时域光电场形式分别为^[13]

$$E_p(t) \propto \exp\{i[\omega_p t + \phi_p(t)]\}, \quad (3)$$

$$E_s(t) \propto \exp\{i[\omega_s t + \phi_s(t)]\}, \quad (4)$$

$$E_{A_{sm}}(t) \propto \exp\{i[(m + 1)\omega_p - m\omega_s]t + i[(m + 1)\phi_p(t) - m\phi_s(t)]\}, \quad (5)$$

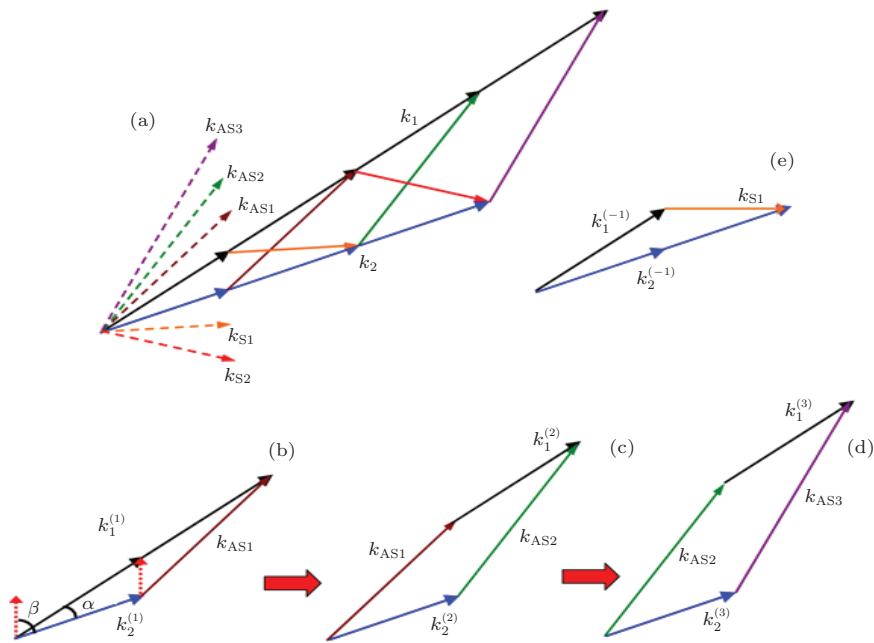


图 1 级联四波混频原理图

其中 ω_p , ω_s , $\phi_p(t)$, $\phi_s(t)$ 分别为抽运光、种子光的中心角频率和时域相位.

实验中, 假设抽运光通过啁啾镜对引入负啁啾, 而种子光在通过透镜、滤波片等固体透明介质和气体介质时引入正啁啾, 则有

$$\partial^2 \phi_p(t) / \partial t^2 < 0, \quad \partial^2 \phi_s(t) / \partial t^2 > 0. \quad (6)$$

从而对于第 m 级信号光, 则有

$$\begin{aligned} & \partial^2 \phi_{A_{sm}}(t) / \partial t^2 \\ & = (m+1) \partial^2 \phi_p(t) / \partial t^2 - m \partial^2 \phi_s(t) / \partial t^2 \\ & < 0. \end{aligned} \quad (7)$$

所以第 m 级信号光为负啁啾脉冲. 这样就可以让其通过一定厚度的透明固体介质或在空气中经过一定长度的传输引入正啁啾, 使其正负啁啾恰好抵消, 从而第 m 级信号光成为了傅里叶转换极限脉冲.

3 实验装置

入射激光是由商用飞秒激光加上空心光纤压缩系统来获得, 其装置简图如图 2(a) 所示. 实验所用的飞秒激光器是由商用 Ti:sapphire 再生放大飞秒激光系统 (Spectra Physics 公司, Spitfire) 产生, 激光器输出飞秒激光脉冲的单脉冲能量约为 0.6

mJ, 脉冲宽度约为 39 fs, 中心波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz. 激光器输出的激光经过一片连续可变中性密度滤光片衰减后, 单脉冲能量约为 290 μ J 的激光, 经过焦距为 1.1 m 的平凸薄透镜聚焦, 入射到内径为 250 μ m、长为 60 cm 并充有约 10^3 Pa 气压氩气的空心光纤系统中. 由于充气空心光纤中的自相位调制作用, 经过空心光纤后的激光光谱得到了展宽. 从空心光纤中出射的激光, 经过一自制软边光阑, 滤出中心亮斑部分的激光, 由焦距为 500 mm 的平凸薄透镜准直后, 单脉冲能量约为 40 μ J, 入射到最新设计的光路简单紧凑的飞秒级联四波混频系统中. 最新设计的这一简单紧凑的多色飞秒激光产生系统装置光路图, 如图 2(b) 所示. 入射激光首先经过焦距为 500 mm 的平凸薄透镜聚焦, 再通过截止波长为 805 nm 的分色镜分为长波段和短波段两束光束. 其中, 长波段光束经过分色镜反射后再经过截止波长为 (800 \pm 10 nm) 的长通滤波片滤波, 注入一时间位移分辨率约为 3 fs 的手动平移台系统调节时间延迟; 另外一束短波段光束则经过分色镜透射后再经过参数为 40 fs²/次的啁啾镜对来回反射 8 次, 引入 320 fs² 的负啁啾量. 长、短波段的两光束最后经过平面反射银镜以 2.05° 的夹角入射到 0.5 mm 厚的 CaF₂ 晶体中, 调节平面反射银镜, 使得两光束在空间上最大程度的重合, 并且通

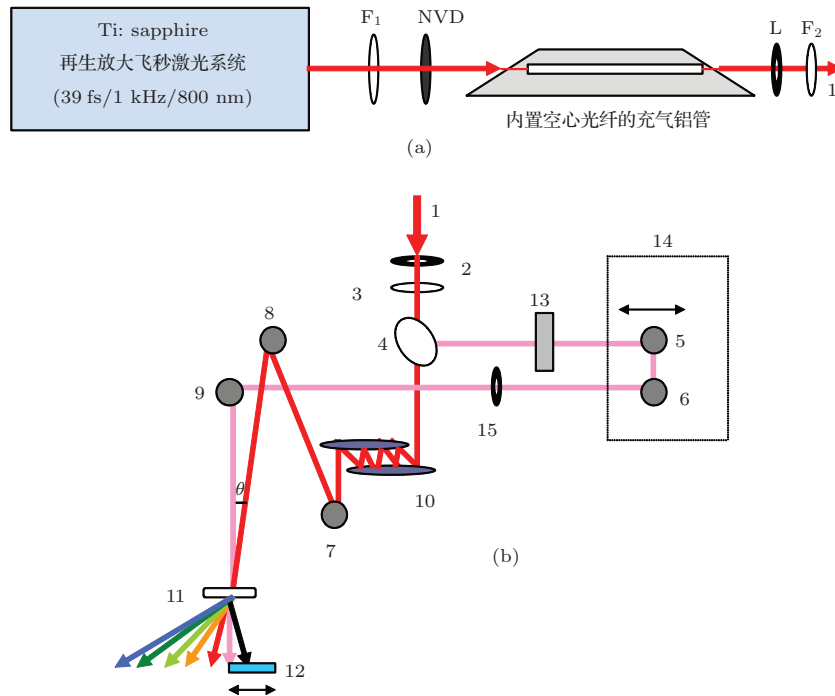


图 2 (a) 充气空心光纤展宽光谱示意图 (F_1 , F_2 为平凸透镜, NVD 为中性连续可变衰减片、L 为自制软边光阑); (b) 多色飞秒激光产生实验装置图 (1 为经充气空心光纤展宽后的激光束, 2 和 15 为小孔, 3 为平凸透镜, 4 为分色镜, 5, 6, 7, 8, 9 为平面反射银镜, 13 为长通滤波片, 14 为手动平移延时光学台, 10 为啁啾镜对, 11 为非线性介质, 12 为光谱仪)

过手动调节平移台延时,使得两光束在时间上也重合.这样,入射的两束光波在CaF₂晶体中级联四波混频作用,产生了7个频率上转换信号光和一个频率下转换信号光.获得的多色飞秒激光由一平凸薄透镜聚焦到固定在平移台上的光纤光谱仪(Ocean Optics公司HR4000)测量其光谱.

4 实验结果与分析

经过空心光纤系统展宽后的飞秒激光光谱,以及经分色镜后的长波段和短波段两束激光光谱,如图3(a)所示.短波段光束聚焦入射到CaF₂晶体表面的光斑直径(1/e²)大约为290 μm,单脉冲能量约为18 μJ,中心波长约为746 nm,光谱的半高全宽约为97 nm,长波段光束光斑直径(1/e²)约为360 μm,单脉冲能量约为20 μJ,中心波长约为832 nm,光谱的半高全宽约为40 nm.

实验中将厚度为0.5 mm的CaF₂作为级联四波混频过程的非线性介质,通过改变两束入射激光在CaF₂晶体表面的入射夹角θ,分别得到的一级、二级和三级频率上转换信号光(As1, As2和As3)的光谱分别如图3(b), (c)和(d)所示.

图3(b), (c)和(d)表明,入射到晶体表面的两光束夹角越大,则同一级次的多色飞秒激光脉冲中心频率越大,波矢越长.因此,通过改变种子光和抽运光的入射夹角,可以改变各级次信号光的中心波长.这是由于四波混频过程必须要满足相位匹配,入射到晶体表面的两光束夹角θ与产生的第m级频率上转换信号光满足关系式^[18]

$$\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{[(m+1)k_1 + mk_2]^2 - k_{Asm}^2}{(m^2+m)k_1k_2} \right\}^{1/2}, \quad (8)$$

其中k₁, k₂和k_{Asm}分别是抽运光、种子光和第m级频率上转换信号光的光波矢.另外从图3可以看出,As1, As2和As3光谱平滑程度依次升高,这是由于级联四波混频产生的每一级频率上转换信号光都是前一级次的信号光跟两束入射光的四波混频产生.在数学计算上每一个级联四波混频过程都是一个频率域内的积分过程,所以产生的信号光级次越高,相应的光谱形状越平滑.利用功率计测量了不同夹角下的As1和As2信号光的单脉冲能量,结果如图4(a)所示.从图4(a)中可以看出,两束入射光夹角θ为2.05°时,As1和As2信号光的能量达到最

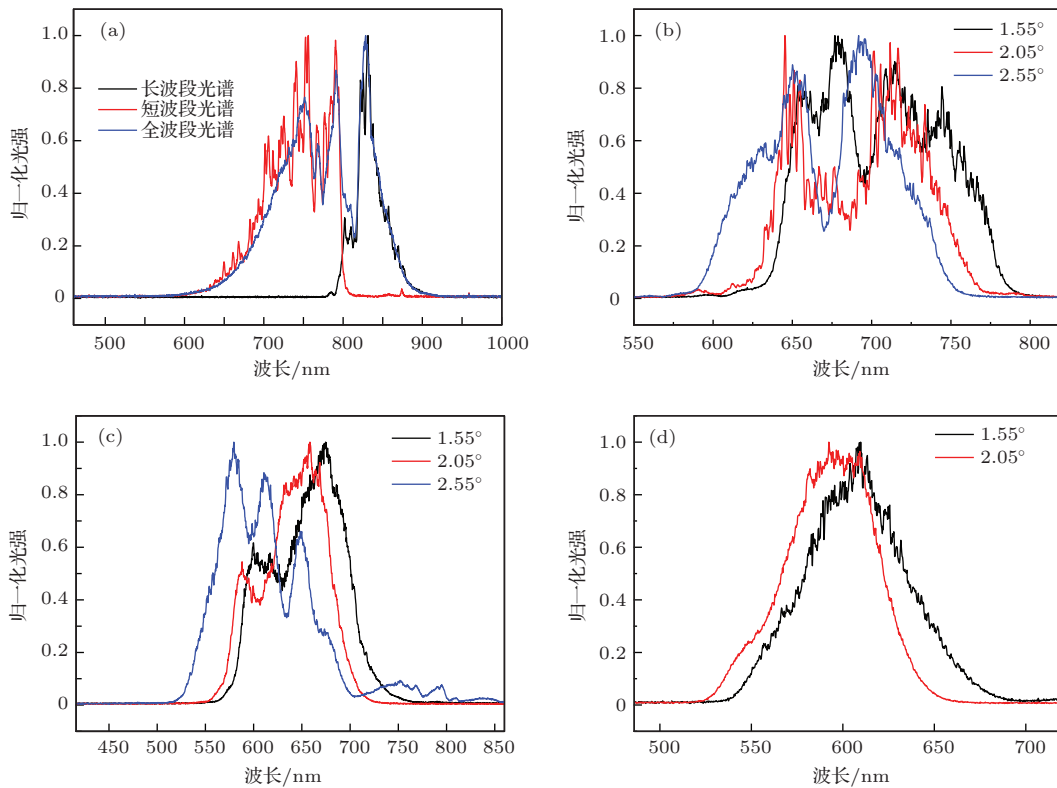


图3 (网刊彩色) (a)入射光、分色镜所分成的长、短波段两光束光谱图; (b), (c)和(d)分别是As1, As2和As3在CaF₂厚度为0.5 mm,入射夹角分别为2.55°, 2.05°和1.55°时的光谱图

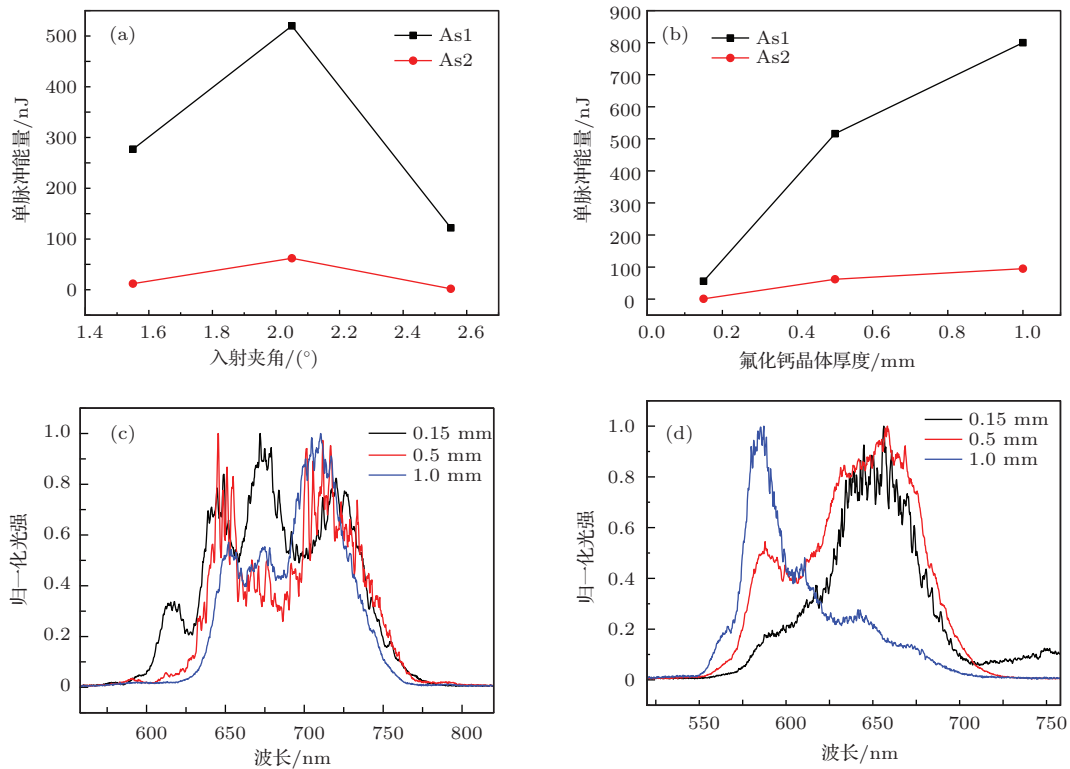


图4 (网刊彩色) (a) As1, As2 在 CaF₂ 厚度为 0.5 mm, 入射夹角分别为 1.55°, 2.05° 和 2.55° 时的单脉冲能量; (b) As1, As2 在入射夹角为 2.05°, CaF₂ 厚度分别为 0.15, 0.5, 1.0 mm 时的单脉冲能量; (c), (d) 分别是 As1, As2 在入射夹角为 2.05°, CaF₂ 厚度分别为 0.15, 0.5, 1.0 mm 时的光谱图

大, 分别为 520 和 62 nJ, θ 为 1.55° 时次之, 分别为 277 和 12 nJ, θ 为 2.55° 时最小, 分别为 122 和 2 nJ. 这是因为两束入射光夹角 θ 分别为 1.55°, 2.05° 和 2.55° 时, 由 (8) 式计算得出 As1 信号光最佳相位匹配时的中心波长分别为 678, 676 和 675 nm, 而相对应上述夹角, 实际测量到的 As1 信号光的中心波长分别为 703, 692 和 673 nm, 接近最佳相位匹配时的中心波长的程度逐次升高, 相位匹配情况也逐次变好, 然而两束入射光在 CaF₂ 晶体中的波前重合的程度会随着入射夹角增大而逐次变差. θ 为 2.05° 相比于 θ 为 1.55° 时的相位匹配程度要好, 此时相位匹配程度比波前重合程度对转换效率的影响更大, 而 θ 为 1.55° 相比于 θ 为 2.55° 时的波前重合程度要好, 波前重合程度对转换效率的影响超过了相位匹配程度的影响. 所以出现了如图 4 (a) 所示的结果.

基于前面的研究结果, 我们选定入射夹角 θ 为 2.05° 时, 在厚度分别为 0.15, 0.5 和 1.0 mm 的 CaF₂ 晶体中获得多色飞秒激光, 得到的一级和二级频率上转换信号光 (As1 和 As2) 光谱分别如图 4 (c) 和 (d) 所示. 利用功率计测量了不同厚度下的 As1 和 As2 信号光的单脉冲能量, 结果如图 4 (b) 所示. 由图 4 (b) 可知, As1 和 As2 信号光的能量随着晶体厚

度的增加而增加. 这是因为产生的信号光光强 I 与晶体厚度 L 近似满足表达式 $I \propto L^2$, 晶体较厚, 两入射光束在晶体中的非线性作用长度也较长, 产生的信号光光强也较强, 能量也就越大.

图 4 (c) 表明, 在 CaF₂ 厚度为 0.15 mm 时, As1 光谱的半高全宽最宽, 为 106 nm, 0.5 mm 时次之, 为 104 nm, 1.0 mm 时最小, 为 76.5 nm. 由此可以看出, 选择较薄的非线性介质能够获得较宽光谱的信号光. 由理论表达式 $\Delta k \propto 1/L$, 厚度 L 较小的非线性介质有较宽的匹配带宽 Δk . 可是从图 4 (b) 可以看出 As2 的光谱在 CaF₂ 厚度为 0.5 mm 比厚度为 0.15 mm 时要宽, 半高全宽各为 83 和 59 nm. 这是由于 CaF₂ 厚度 L 也影响到了产生的信号光的光强 I , 其表达式为 $I \propto L^2$. 对于二级频率上转换信号光 As2 是由 As1 与种子光和信号光四波混频产生, 信号光 As1 的强弱直接影响到 As2 的产生. 实验中, CaF₂ 厚度为 0.5 mm 时, As1 单脉冲能量约为 510 nJ, 而 CaF₂ 厚度为 0.15 mm 时, As1 单脉冲能量下降到 50 nJ. 由于一级信号光脉冲可以近似看做高斯脉冲, 参与四波混频作用的是高斯脉冲顶峰两侧一定的光谱范围, 光强越强, 参与作用的光谱范围就越大, 产生的二级信号光光谱就会较宽, 另外一方面, 一级信号光对二级信号光的交叉相位

调制也会起到一定的影响,非线性介质厚度较厚,非线性作用长度就较长,一级信号光的交叉相位调制也就会较强,光谱展宽的就会较宽,但是如果一级信号光的光强很弱,交叉相位调制的影响也会较弱.

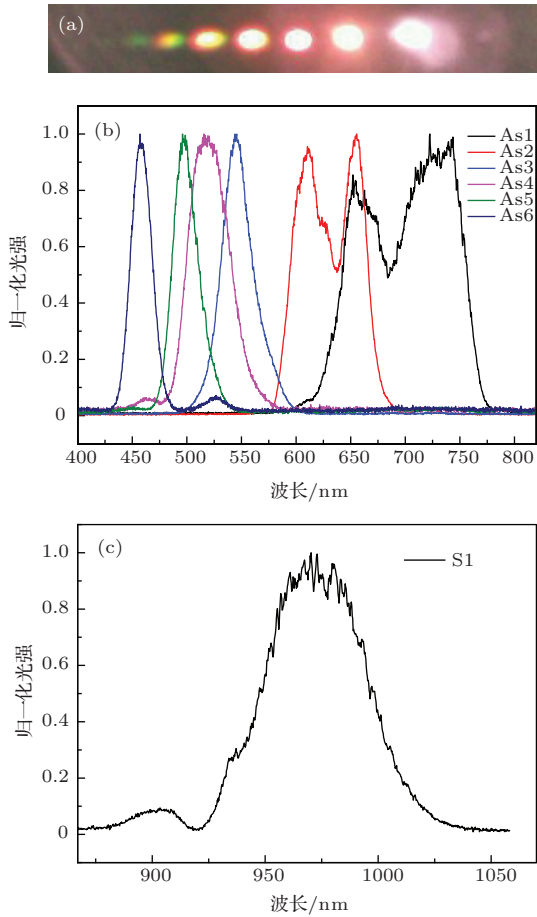


图5 (网刊彩色) (a) 是用相机拍摄的信号光光斑彩色照片; (b), (c) 分别是频率上(下)转换信号光的光谱

基于前面的研究和分析,考虑到在飞秒光谱等应用上需要较宽的光谱宽度和较高的能量的多色飞秒激光,实验中,选择入射夹角 θ 为 2.05° , 0.5 mm厚的CaF₂作为非线性光学介质. 图5(a)所示的多色飞秒激光光斑彩照是拍摄的在CaF₂晶体后40 cm处的白纸上的光斑照片. 实验中获得了7个频率上转换和1个频率下转换信号光,其光谱覆盖了从紫外到近红外的波段(450—970 nm),如图5(b)和(c)所示. 对于这些沿不同角度出射的宽带多色飞秒激光脉冲,可以利用一块凹面球镜和一块以布儒斯特角摆放的三棱镜来进行合束^[19,20],也可以使用两块合适焦距的抛物面镜对出射的多色光先后进行准直和聚焦,并将一块光栅置于聚焦点处,对多色光出射角度进行补偿而合成一束光脉冲^[21,22],最后利用脉冲整形装置(声光调制器或

空间光调制器)来精确控制合束脉冲的光谱相位和光电场振幅,即可获得超宽带周期或亚周期量级的激光脉冲. As1, As2和S1信号光单脉冲能量分别约为600, 70和260 nJ. As1, As2的光谱半高全宽分别为104 nm和83 nm,我们对其进行傅里叶变换,得到As1, As2的傅里叶转换极限脉宽分别为6.7 fs和8.1 fs. 通过增加或减少短波段光束在啁啾镜对之间的反射次数来调节As1和As2信号光的负啁啾量,并在信号光传播路径中插入一定厚度的玻璃片等固体透明介质来补偿信号光的负啁啾,可以使得信号光脉冲成为近傅里叶转换极限脉冲. 并且从CaF₂晶体中出射的As2信号光会比As1信号光更要接近傅里叶转换极限脉冲,这是由于,一方面较高级次的信号光在级联四波混频过程中引入的相位改变量较大,因此As2比As1信号光的负啁啾量要小,另外一方面,较高级次的信号光中心波长较短,在0.5 mm的CaF₂晶体中引入的正啁啾量较大,但是此时信号光的正啁啾量还不足以完全抵消负啁啾量,所以As2比As1信号光的正负啁啾量相互补偿地更好.

由于二级以上的频率上转换信号光的光谱形状非常接近高斯型,对其进行了高斯拟合,如图6(a)和(b)所示.

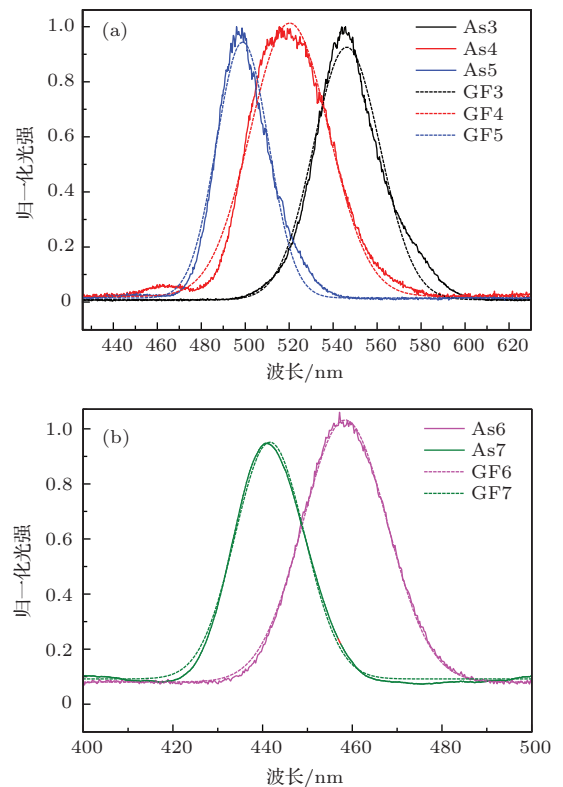


图6 (网刊彩色) (a) As3, As4和As5及其高斯拟合GF3, GF4和GF5光谱图; (b) As6和As7及其高斯拟合GF6和GF7光谱图

对 As3 到 As7 信号光光谱进行高斯拟合, 所得到的中心波长分别为 546.2, 520.2, 498.8, 458.4 和 441.6 nm, 光谱的半高全宽分别为 35.7, 42, 27.9, 22.2 和 18.4 nm, 相应它们的傅里叶转换极限脉宽分别为 12.3, 9.5, 13.1, 13.9 和 15.6 fs, 如图 7 所示. 从图 7 中可以看出二级以上的频率上转换信号光光谱的半高全宽可以支持小于 16 fs 的傅里叶转换极限脉冲宽度. 而且级次越低, 脉宽越窄, 这是因为级次越高的信号光, 相位匹配越难, 匹配带宽也相应变窄.

As3 到 As7 信号光光谱形状越来越接近高斯型, 到 As6 和 As7 时, 完全成为了高斯型. 将来, 选择合适的非线性光学介质, 以及适量提高抽运光的能量, 将二级以上的频率上转换信号光的能量提高到 60 nJ 以上, 进行优化后的信号光将在非线性光谱学实验中发挥重大的作用.

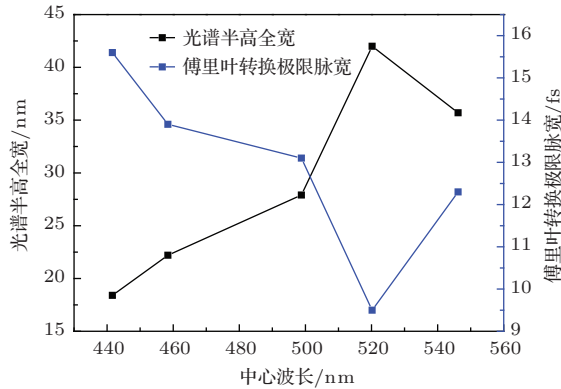


图 7 As3 到 As7 信号光的中心波长与其半高全宽、傅里叶转换极限脉宽对应图

5 结 论

本文通过设计更加简单紧凑的实验装置, 优化两束入射光之间的夹角以及 CaF_2 晶体的厚度, 我们选定入射夹角为 2.05° , CaF_2 晶体的厚度为 0.5 mm, 并且使得两束入射光中一束通过啁啾镜对引入 320 fs^2 的负啁啾, 另一束带正啁啾, 在上述实验条件下, 我们获得了光谱半高全宽近 100 nm, 支持转换极限脉宽小于 10 fs 的超宽带多色飞秒激光脉冲. 在以后的实验中, 进一步优化这些多色飞秒激光脉冲的光斑质量, 能量稳定度, 并提高其能量, 将使得这些超宽带多色飞秒激光脉冲在多色抽运-探

测等非线性光谱学实验中发挥重大作用.

参考文献

- [1] Fuji T, Takuya Horio, Toshinori Suzuki 2007 *Opt. Lett.* **32** 2481
- [2] Takao Fuji, Suzuki Toshinori 2007 *Opt. Lett.* **32** 3330
- [3] Ji L L, Lu P X, Chen W, Dai N L, Zhang J H, Jiang Z W, Li J Y, Li W 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5973 (in Chinese)[季玲玲, 陆培祥, 陈伟, 戴能利, 张继皇, 蒋作文, 李进延, 李伟 2008 物理学报 **57** 5973]
- [4] Kida Y, Jun Liu, Takahiro Teramoto, Takayoshi Kobayashi 2010 *Opt. Lett.* **35** 1870
- [5] Ghotbi M, Peter Trabs, Marcus Beutler, Frank Noack 2013 *Opt. Lett.* **38** 486
- [6] Yusuke Furukawa, Yasuo Nabekawa, Tomoya Okino, Amani Eilanlou A, Takahashi E J, Pengfei Lan, Ishikawa K L, Takeshi Sato, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa 2012 *Opt. Lett.* **37** 2922
- [7] Shan Yang, Sanjay Adhikari, Manoj Dobbala, Sasidhar Adusumilli, Joseph Rowley D, Feruz Ganikhanov, Lingquin Zhang, Glen Marrs, Robert Wysolmerski, George Spiro 2013 *Appl. Phys. B* **111** 617
- [8] Wang K, Liu T M, Juwell Wu, Horton N G, Lin C P, Chris Xu 2013 *Proc. of SPIE* **8588** 85882L-1
- [9] Crespo H, Mendonca J T 2000 *Opt. Lett.* **25** 829
- [10] Liu J, Kobayashi Takayoshi 2008 *Opt. Express*. **16** 22119
- [11] Liu J, Kobayashi Takayoshi 2009 *Opt. Express*. **17** 4984
- [12] Liu J, Kobayashi Takayoshi 2009 *Opt. Lett.* **34** 1066
- [13] Liu J, Kobayashi Takayoshi 2009 *Opt. Lett.* **34** 2402
- [14] Liu W M, Zhu L D, Wang L, Fang C 2013 *Opt. Lett.* **38** 1772
- [15] Zhu L D, Liu W M, Fang C 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 061110
- [16] Yang H, Zhang T Q, Wang S F, Gong Q H 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1292 (in Chinese)[杨宏, 张铁桥, 王树峰, 龚旗煌 2000 物理学报 **49** 1292]
- [17] Liu J, Takayoshi Kobayashi 2010 *Opt. Commun.* **238** 1114
- [18] Mendonca J T, Crespo H, Guerreiro A 2001 *Opt. Commun.* **188** 383
- [19] Eiichi Matsubara, Yuta Kawamoto, Taro Sekikawa, Mikio Yamashita 2009 *Opt. Lett.* **34** 1837
- [20] Zhi M, Wang K, Hua X, Sokolov A V 2011 *Opt. Lett.* **36** 4032
- [21] Weigand R, Mendonca J T, Crespo H M 2009 *Phys. Rev. A* **79** 063838
- [22] Silva J L, Weigand R, Crespo H M 2009 *Opt. Lett.* **34** 2489

Generation of broadband multicolor femtosecond laser pulses by using cascading four-wave mixing in a CaF₂ plate*

Liu Qi-Fu¹⁾ Li Fang-Jia¹⁾²⁾ Liu Jun^{1)†}

1) (State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2) (MOE Key Laboratory of Advanced Micro-structured Materials, Institute of Precision Optical Engineering, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

(Received 24 October 2013; revised manuscript received 2 January 2014)

Abstract

Femtosecond laser pulses with new properties have been required for the great progress of femtosecond laser spectroscopy experiments. For example, simultaneous multiple ultrashort femtosecond laser pulses with different frequencies are needed in multicolor pump-probe experiments. Here, we have designed a much more simple and compact system for multicolor femtosecond pulse generation by using cascaded four-wave mixing in a 0.5 mm thick CaF₂ plate. Multicolor femtosecond pulses with a sub-10 fs Fourier transform limit pulse width have been obtained by using two oppositely chirped incident pulses. These ultrashort multicolor femtosecond pulses will be used as a new laser source in femtosecond laser spectroscopy.

Keywords: multicolor femtosecond laser, cascading four-wave mixing, Fourier transform limit pulse width

PACS: 42.65.-k, 42.65.ky, 42.65.Re

DOI: [10.7498/aps.63.094209](https://doi.org/10.7498/aps.63.094209)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61178006, 11274327, 61221064), the Shanghai Pujiang Talent Plan, China (Grant No. 12PJ1409300), and the Recruitment Program of Global Experts.

† Corresponding author. E-mail: jliu@siom.ac.cn