

飞秒掺钛蓝宝石激光三倍频理论和实验研究^{*}

刘运全 张 杰 梁文锡 王兆华

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2004 年 5 月 19 日收到, 2004 年 10 月 22 日收到修改稿)

从理论和实验上分别研究了飞秒掺钛蓝宝石激光二倍频和三倍频的非线性频率转换过程. 采用 I 类相位匹配非共线和频方法得到飞秒掺钛蓝宝石激光的三倍频 260.1 nm 输出, 转换效率达 6.4%, 脉冲宽度为 169 fs. 这为时间分辨电子显微镜提供了一种超短脉冲的紫外光源.

关键词: 飞秒激光, 三倍频, 时间分辨, BBO 晶体

PACC: 4265M, 4270

1. 引 言

近些年来, 随着啁啾脉冲放大(CPA)技术的发展, 飞秒掺钛蓝宝石(Ti:Sa)激光在超强超快物理领域有着重要的应用^[1,2]. Ti:Sa 激光具有很宽的调谐范围(750—900 nm), 但在一些实验工作中需要短波长的飞秒激光, 所以把飞秒 Ti:Sa 激光波长拓展到可见光及紫外波段是非常有意义的. 比如飞秒激光与金属材料相互作用产生超短脉冲的电子束, 可以作为时间分辨电子衍射装置^[2]以及加速器注入器的电子源^[3]. 但因为大多数金属的逸出功大于 4eV, 而且单光子光电效应的量子效率远大于多光子光电效应的量子效率, 所以单脉冲能量大于数十微焦量级的三倍频飞秒 Ti:Sa 激光是很好的紫外光源. 文献[4]利用飞秒激光与光阴极相互作用产生的光电子作为电子源, 研究了时间分辨电子显微镜的可行性. 可调谐的紫外光源在激光光谱学、激光化学以及激光核聚变(ICF)^[1]和 x 射线激光抽运等方面也有着重要的应用.

红外超短脉冲激光的非线性频率转换理论是一种正在发展的理论, 同时人们也进行了许多超短脉冲频率转换实验. Ima^[5]研究了 Alexandrite 激光器(调谐范围为 732—778 nm)的三倍频, 其脉冲宽度为 200 μ s, 和频采用 I 类相位匹配, 转换效率接近 10%. Ringling 等^[6]通过频率转换得到 Ti:Sa 的四倍

频输出, 其实验方案为先通过一块 1 mm 厚的 β 相偏硼酸钡(BBO)晶体倍频, 采用 0.3 mm 厚的 BBO 和频晶体 II 类相位匹配得到三倍频输出, 然后通过非共线和频得到四倍频输出, 他们实验中三倍频的转换效率为 6%. Rotermund 等^[7]得到了连续锁模 Ti:Sa 激光的四倍频输出, 在他们的实验中三倍频光由 I 类相位匹配和频得到的, 这样不仅减小由于群速度失配引起的基频光和倍频光的走离, 还可以增加有效非线性系数. 夏江帆等^[8]详细地研究了 BBO 晶体中的非共线参量过程的带宽与增益特性.

本文从理论上分析了飞秒激光通过非线性晶体的频率转换过程, 讨论了群速度失配和群速度色散对转换效率的影响. 我们采用两块 BBO 晶体得到飞秒 Ti:Sa 激光的三倍频输出, 首先由一块晶体得到 Ti:Sa 激光的倍频输出, 然后采用非共线 I 类相位匹配的办法, 把基频光与倍频光进行和频. 由于合理地设计晶体的参数, 我们实现了转换效率达 6.4%, 脉冲宽度为 169 fs 的 Ti:Sa 激光三倍频输出.

2. 耦合波方程

在超短脉冲频率转换方面, BBO、三硼酸锂(LBO)和磷酸二氢钾(KDP)等晶体都是性能优越的材料. BBO 晶体具有宽的透明范围(190—3500 nm)和相位匹配范围(409.6—3500 nm), 还具有较大的非线性系数和较高的抗光损伤阈值. BBO 晶体在飞

^{*} 国家自然科学基金(批准号:10390160, 60128505)和国家重点基础研究专项基金(批准号:G1999075206)资助的课题.

秒激光频率转换、光学参量放大器 (OPA) 和光学参量振荡器 (OPO) 等方面有着广阔的应用前景. 由于超短脉冲具有很宽的频谱宽度, 在频率转换过程中, 群速度色散对转换效率具有很大的影响, 很难同时满足相位匹配和群速度匹配. BBO 晶体的群速度色散相对于其他非线性晶体要小得多. 因此, 我们为了得到较高的三倍频转换效率和较短的脉冲宽度, 需要优化设计晶体的参数和实验方案.

2.1. 相位匹配和群速度匹配

对于在介质中传播的超短脉冲激光, 由光波的波数色散关系为

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left(\frac{dk}{d\omega}\right)_{\omega_0} d\omega + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2k}{d\omega^2}\right)_{\omega_0} d\omega^2 \dots,$$

群速度指数可以表示为

$$u_g^{-1} = \left(\frac{dk}{d\omega}\right)_{\omega_0} = \frac{n}{c} - \frac{\lambda}{c} \frac{dn}{d\lambda},$$

其中 ω_0 为激光的中心频率, 群速度指数的单位为 fs/mm. 在波数色散关系中,

$$\left(\frac{d^2k}{d\omega^2}\right)_{\omega_0} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2n}{d\lambda^2}$$

为群速度色散项, 单位为 fs^2/mm . 超短脉冲频率转换过程中群速度失配和群速度色散具有很大的影响, 也正是由于超短脉冲激光各频率成分在非线性介质中的速度不一样, 以致引起转换效率减小和脉冲展宽.

对于飞秒激光倍频过程, 为了得到较高的转换效率, 需要满足的 I 类相位匹配和群速度匹配条件为 $k(2\omega_e) = 2k(\omega_o)$ 和 $(dk/d\omega)_o = (dk/d\omega)_e$, 其中 ω 为角频率, k 为波矢. 但同时实现相位匹配和群速度匹配是很难的. 而对于和频过程, 更是很难同时实现相位匹配和群速度匹配条件的. 所以为了得到较高的转换效率, 可以在满足 I 类相位匹配条件 $k(3\omega_e) = k(\omega_o) + k(2\omega_o)$, 群速度匹配 $u(\omega)$, $u(2\omega)$ 和 $u(3\omega)$ 之间寻找最优的转换条件.

对于 BBO 晶体满足的 Sellmeier 关系可以表示为

$$n_o^2(\lambda) = 2.7359 + 0.01878(\lambda^2 - 0.01822) - 0.01354\lambda^2, \quad (1)$$

$$n_e^2(\lambda) = 2.3753 + 0.01224(\lambda^2 - 0.01667) - 0.01516\lambda^2, \quad (2)$$

式中 n_o 和 n_e 分别为 o 光和 e 光在 BBO 晶体中的折

射率. 群速度指数^[9] 可以定义为 $m = c/u = \left(n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}\right)_{\lambda_0}$, 这与折射率 n 很相似. 从 Sellmeier 关系可以计算 BBO 晶体对 o 光、e 光的折射率指数. 为了提高转换效率, 倍频和和频过程均需满足相位匹配条件. 这样, 我们需要计算在满足相位匹配时候的折射率和群速度指数.

在相位匹配时, 负单轴晶体 e 光折射率可以由 $n_e(\theta) = n_e n_o \sqrt{n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta}$ 计算, BBO 倍频 I 类相位匹配角可以由

$$[\theta_m]_I = \arcsin \left[\frac{(n_o(2\omega) n_o(\omega))^2 - 1}{(n_o(2\omega) n_e(2\omega))^2 - 1} \right]^{1/2} \quad (3)$$

计算得到 $\theta_m = 29.2^\circ$ (800 → 400 nm, I 类匹配), 和频的 I 类相位匹配角可以由下式计算:

$$\omega_1 n_o(\omega_1) + \omega_2 n_o(\omega_2) = \omega_3 n_e(\omega_3, \theta_m). \quad (4)$$

由 (4) 式可得

$$\theta_m = \left\{ \frac{n_o^2(3\omega)}{n_o^2(3\omega) - n_e^2(3\omega)} \left[\frac{9n_o^2(3\omega)}{(2n_o(2\omega) + n_o(\omega))} - 1 \right] \right\}^{1/2}. \quad (5)$$

计算得到 $\theta_m = 42.2^\circ$ (800 + 400 → 267 nm, I 类匹配). 我们计算了 BBO 晶体中 o 光和 e 光群速度的倒数 (图 1). 由图 1 可以看出, 不同频率的光在 BBO 晶体中群速度有着很大的差异. 在满足相位匹配时的群速度指数类似于折射率, 可以由 $m_e(\theta) = m_e m_o \sqrt{m_o^2 \sin^2 \theta + m_e^2 \cos^2 \theta}$ 得到. I 类相位匹配倍频过程群速度失配量为

$$\nabla u_{\omega_o \rightarrow \omega_e}^{-1} = u_e^{-1}(2\omega) - u_o^{-1}(\omega) = 192 \text{ fs/mm}.$$

对于 I 类匹配的和频过程中各频率成分失配量分别为

$$\nabla u_{\omega_o \rightarrow 3\omega_e}^{-1} = u_e^{-1}(3\omega) - u_o^{-1}(\omega) = 761 \text{ fs/mm},$$

$$\nabla u_{2\omega_o \rightarrow 3\omega_e}^{-1} = u_e^{-1}(3\omega) - u_o^{-1}(2\omega) = 434 \text{ fs/mm},$$

$$\nabla u_{2\omega_o \rightarrow \omega_o}^{-1} = u_o^{-1}(2\omega) - u_o^{-1}(\omega) = 327 \text{ fs/mm}.$$

在超短脉冲频率转换实验中, 往往要求转换后光波的脉冲宽度不能有太大的变化. 在这种条件下, 对非线性晶体长度有一定的限制. 实际实验中, 要求晶体的长度不超过 $L_b = \tau_\omega \times \Delta u$, 经过 L_b 后, 谐波宽度为 $\tau_2 = \tau_\omega \times (1 + L/L_b)$. 由此我们可以得到, 对于基频脉冲宽度为 150 fs 的抽运激光, 倍频晶体长度应选为 $L_b = \tau_o (u_{2\omega}(e) - u_{1\omega}(o)) = 0.89 \text{ mm}$. 同样, 我们可以得到和频晶体长度不应超过 0.1 mm. 群速度失配长度定义为 $L_{ij} = \tau_o (1/u_i - 1/u_j)$, 在和频 I 类相位匹配过程, L_{23} 约为 L_{13} 的 1.5 倍, 而对于 II 类匹

配的和频过程,群速度失配长度 L_{23} 是 L_{13} 的 4 倍,这样转换效率就会大大降低,其中 L_{13} , L_{23} 分别为基波和二倍频波、基波和三倍频波的相位失配长度。

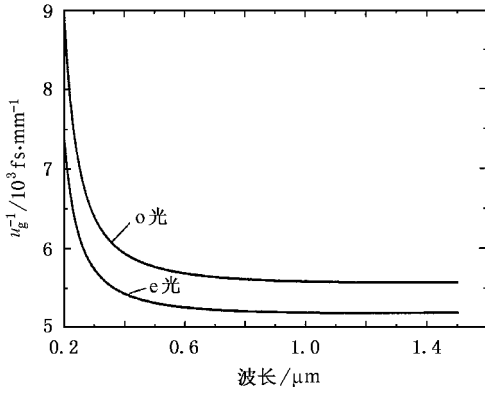


图 1 BBO 晶体的各频率成分 o 光、e 光群速度的倒数

2.2. 耦合波方程

吕铁铮等^[10]已经计算了超短脉冲和频在 BBO 晶体中的转换效率问题,在这里我们不再讨论 BBO 晶体对飞秒激光的倍频过程.超短脉冲激光混频过程的表达方程^[11]如下:

$$\frac{\partial A^{(1)}}{\partial z} + \frac{1}{u_1} \frac{\partial A^{(1)}}{\partial t} - \frac{i}{2} g_1 \frac{\partial^2 A^{(1)}}{\partial t^2} = - \frac{i 8 \pi d_{\text{eff}} \omega^{(1)}}{c n_o^{(1)}} A^{(3)} (A^{(2)})^* \exp(-i \Delta k_0 z), \quad (6)$$

$$\frac{\partial A^{(2)}}{\partial z} + \frac{1}{u_2} \frac{\partial A^{(2)}}{\partial t} - \frac{i}{2} g_2 \frac{\partial^2 A^{(2)}}{\partial t^2} = - \frac{i 8 \pi d_{\text{eff}} \omega^{(2)}}{c n_o^{(2)}} A^{(3)} (A^{(1)})^* \exp(-i \Delta k_0 z), \quad (7)$$

$$\frac{\partial A^{(3)}}{\partial z} + \frac{1}{u_3} \frac{\partial A^{(3)}}{\partial t} - \frac{i}{2} g_3 \frac{\partial^2 A^{(3)}}{\partial t^2} = - \frac{i 8 \pi d_{\text{eff}} \omega^{(3)}}{c n_e^{(3)}(\theta_m)} A^{(1)} A^{(2)} \exp(+i \Delta k_0 z). \quad (8)$$

方程(6)–(8)中, u_j ($j = 1, 2, 3$) 分别为基频、二倍频和三倍频光的群速度, z 和 t 为空间和时间坐标, g_j 为群速度色散系数, $8\pi d_{\text{eff}} \omega^{(j)} / c n_{o,e}^{(j)}$ 为耦合系数. 这里我们不考虑三阶非线性相互作用. 相位失配量为 $\Delta k_0 = k_3 - k_1 - k_2$, k_1 , k_2 和 k_3 分别为基频、二倍频和三倍频光的波矢, 在这里为了问题的简化我们选择满足相位匹配条件 $\Delta k_0 = 0$. BBO 晶体的有效非线性系数为

$$d_{\text{eff}} = (d_{11} \cos 3\varphi - d_{22} \cos 3\varphi) \cos \theta + d_{31} \sin \theta.$$

对于 I 类倍频过程, 在满足相位匹配时 ($\varphi = 0, \theta = 29.2^\circ$), $d_{\text{eff}} = 1.365 \text{ pm/V}$, 同样对于 I 类和频过程 ($\varphi = 0, \theta = 42.2^\circ$), $d_{\text{eff}} = 1.101 \text{ pm/V}$. 基频、二倍频和三倍频光的群速度色散系数依次为 $g_{1o} = 33.9 \text{ fs}^2/\text{mm}$, $g_{2o} = 146.4 \text{ fs}^2/\text{mm}$ 和 $g_{2e}(\theta_m) = 187.7 \text{ fs}^2/\text{mm}$.

方程(6)–(8)的边界条件为

$$\begin{aligned} A^{(1)}(\chi(t))|_{z=0} &= A_{10}(\chi(t)), \\ A^{(2)}(\chi(t))|_{z=0} &= A_{20}, \\ A^{(3)}(\chi(t))|_{z=0} &= 0. \end{aligned} \quad (9)$$

我们假设基频波、二倍频和三倍频波波形为高斯形状,

$$A^{(j)} = a_j \exp\left(-\frac{2 \ln 2 t^2}{\tau_j}\right) \quad (j = 1, 2, 3) \quad (10)$$

式中 $A^{(j)}$ 为光波的复振幅, τ_j 为光波的时间宽度. 光强度与复振幅的关系为

$$I_j = n_j (2 \mu_0 c) |A^{(j)}|^2.$$

我们采用实验参数 $I_1 = 1.1 \text{ mJ}$ 和 $I_2 = 0.8 \text{ mJ}$, 基频和倍频脉冲宽度均为 150 fs . 通过数值求解上述的一组非线性耦合方程, 我们得到三波经过和频晶体的相对波形关系如图 2 所示. 由图 2 可以发现, 三波不再重合, 二倍频和三倍频波相对基频延迟为 46.6 和 79.2 fs , 这与前面的定量结果是一致的.

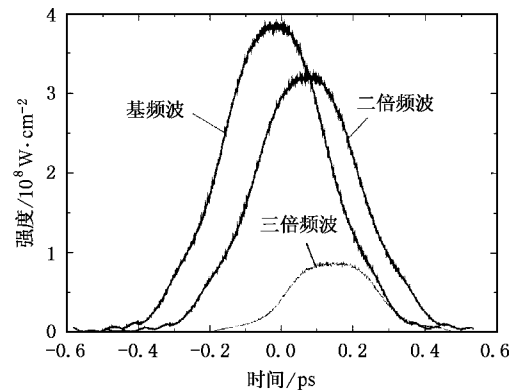


图 2 经过和频 BBO 晶体后基频、二倍频和三倍频光的波形

3. 实验装置和结果

通过前面的定量分析, 我们选用厚度为 0.8 mm 的倍频晶体和厚度为 0.1 mm 的和频晶体. 两块晶体均为 I 类相位匹配. 飞秒激光三倍频实验是在中国科学院物理研究所光物理实验室飞秒激光器上进行

的,这台激光器的输出为 5 mJ,150 fs,输出中心波长为 790 nm,激光光斑直径约为 5 mm.实验装置如图 3 所示.实验所用的激光输出能量为 3.2 mJ,经过倍频晶体(采用倍频晶体为 5 mm × 5 mm × 0.8 mm, $\theta = 29.2^\circ$, $\varphi = 0^\circ$),然后由 800 nm 全透、400 nm 全反的二向色镜 M_1 分束.倍频光经过 M_1 , M_2 , M_3 和 M_4 ,最后经过二向色镜 M_8 与基频光重合入射到和频晶体上(和频晶体尺寸为 7 mm × 7 mm × 0.1 mm, $\theta = 44.3^\circ$, $\varphi = 0^\circ$).其余的基频光经过 M_1 , M_5 后,再经过由 M_6 和 M_7 组成的延迟线,然后经 M_8 后与倍频光在晶体处和频.倍频光能量为 $I_2 = 0.8$ mJ,倍频效率为 25%.其余的基频光能量为 $I_1 = 1.1$ mJ,经过中心波长为 800 nm 的半波片,最后和频得到三倍频输出.和频过程我们采用非共线的方法,这样可以减少分光光学器件对三倍频紫外光的吸收.由于晶体厚度为 0.1 mm,我们选择的非共线夹角较小,这对转换效率影响较小.测量得到三倍频能量为 60 μ J,转换效率 $\eta = I_3 / (I_1 I_2)^2 = 6.4\%$.实际的转换效率

比理论值要低,这是因为各种镀膜的光学元件是不可能做到全透或者全反的,激光能量会有一些的损失.另外,晶体在频率转换过程,反向也会有一定放大,我们采用的 BBO 晶体表面都镀膜以减少转换过程中的能量损失.

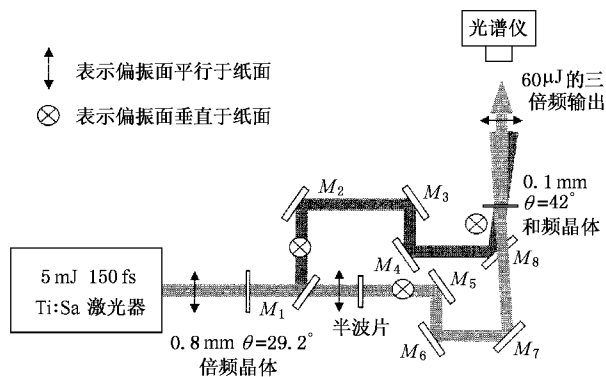


图 3 实验装置示意图 M_2, M_3, M_4 为 400 nm 高反镜; M_5, M_6, M_7 为 800 nm 高反镜; M_1 和 M_8 分别为 400 nm 高反和 800 nm 高透二向色镜

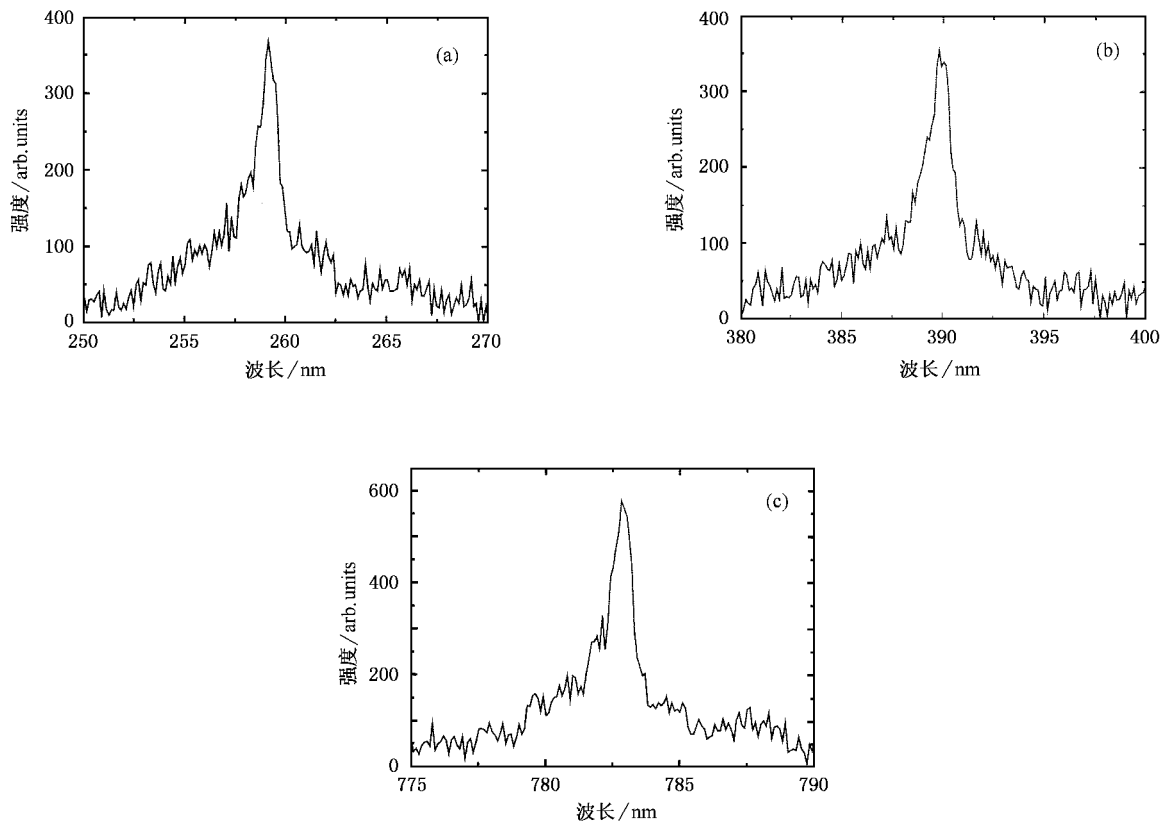


图 4 实验测量得到的基波、二次谐波和三次谐波谱 (a)基波谱 (b)二次谐波谱 (c)三次谐波谱

我们还测量了基频光、二倍频和三倍频光的谱, 如图 4 所示.图 4(a)为基频光的谱 ($\lambda_0 = 782.56$

nm $\Delta\lambda = 3.83$ nm), 虽然基频光的波长不是 800 nm, 由于 BBO 晶体具有很宽的调谐范围, 我们可以旋转晶体角度(实际转换过程中倍频相位匹配角为 26.3°) 得到最大转换效率的倍频输出. 图 4(b) 为二倍频光的谱($\lambda_0 = 390.5$ nm, $\Delta\lambda = 4.68$ nm). 图 4(c) 为三倍频光的谱($\lambda_0 = 260.1$ nm, $\Delta\lambda = 5.16$ nm), 同样在和频过程中我们可以旋转晶体角度(实际转换过程中和频相位匹配角为 41.9°) 得到最大效率的和频输出. 我们发现, 三倍频和二倍频波的光谱宽

度均比基波光谱宽度要大些. 在和频的时候我们采用非共线方法, 并不完全满足相位匹配, 这是利用 BBO 晶体具有较大的光谱转换带宽和非共线允许角^[8]. 采用非共线和频主要是因为使用任何分光器件对紫外光波都是有吸收的, 同时比较容易调节. 我们还测量了三倍频的互相关曲线得到其脉冲宽度约为 169 fs, 见图 5.

4. 结 论

本文首先从理论上分析了超短脉冲激光通过非线性晶体的频率转换过程. 为了得到较高的转换效率的三倍频输出, 并尽量减小群速度失配对三倍频光脉冲宽度的影响, 通过选择合理的晶体尺寸, 我们使用两块 BBO 晶体采用级联方式实现了飞秒 Ti:Sapphire 激光器的三倍频输出, 获得了 $60 \mu\text{J}$ 、中心波长为 260.1 nm、脉冲宽度为 169 fs 紫外光输出, 其转换效率达 6.2%. 这一工作为实现时间分辨电子显微镜提供了超短脉冲的紫外光源.

感谢本实验室激光运行组张东香老师和张秀兰老师对实验工作的支持和帮助.

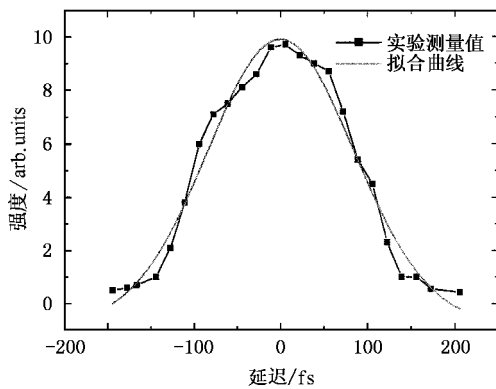


图 5 三次谐波的时间相关测量

- [1] Zhang J 1997 *Physics* **26** 643 (in Chinese) [张 杰 1997 物理 **26** 643]
- [2] Ihee H, Lobastov V A, Gomez U M *et al* 2001 *Science* **291** 458
- [3] Wang X J 2001 *Proceedings of the 2001 Particle Accelerator Conference* (Chicago :ANL and ORNL Organizing Committee)
- [4] Liu Y Q, Zhang J, Zhang J *et al* 2005 *Physics* **34** 287 [刘运全、张杰、张 军等 2005 物理 **34** 287]
- [5] Imai S *et al* 1989 *Appl. Phys. Lett.* **54** 1206

- [6] Ringling J, Kittelmann O, Noack F 1993 *Opt. Lett.* **18** 2035
- [7] Rotermund F, Petrov V 1998 *Opt. Lett.* **23** 1040
- [8] Xia J F, Wei Z Y, Zhang J *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 256 (in Chinese) [夏江帆、魏志义、张 杰等 2000 物理学报 **49** 256]
- [9] Liu H, Yao J Q *et al* 1994 *Opt. Commun.* **109** 139
- [10] Lü T Z *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **51** 1268 (in Chinese) [吕铁铮等 2002 物理学报 **51** 1268]
- [11] Dubietis A *et al* 2000 *Opt. Commun.* **186** 1211

Theoretical and experimental studies on third harmonic generation of femtosecond Ti :sapphire laser^{*}

Liu Yun-Quan Zhang Jie Liang Wen-Xi Wang Zhao-Hua
(*Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China*)
(Received 19 May 2004 ; revised manuscript received 22 October 2004)

Abstract

In this paper , nonlinear frequency conversion of second harmonic and third harmonic of femtosecond Ti :sapphire laser is theoretically and experimentally studied. Noncolinear type I phase matching process is chosen to generate third harmonic of femtosecond Ti :sapphire laser , and we have obtained conversion efficiency of 6.2% at 260 nm output. The pulse duration is about 169 fs. This work will serve as femtosecond ultraviolet source for time-resolved electron microscopy.

Keywords : femtosecond laser , frequency conversion , time resolved , BBO crystals

PACC : 4265M , 4270

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant Nos. 10390160 60128505) and the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. G1999075206).