

飞秒 BBO 光参量放大中闲频光二次谐波的产生*

马 晶 章若冰[†] 刘 博 朱 晨 柴 路 张伟力 张志刚 王清月

(天津大学精密仪器与光电子工程学院, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

(2004 年 11 月 5 日收到, 2005 年 1 月 17 日收到修改稿)

由于相位匹配条件和非线性晶体透光范围的限制, 400 nm 蓝光抽运的飞秒 β -BaB₂O₄ (BBO) 光参量放大 (OPA) 输出的参量光调谐范围有限, 很难得到波长小于 460 nm 的蓝光和近紫外光. 实验采用 1 kHz 钛宝石九通啁啾脉冲放大器的倍频蓝光作抽运光, 超连续白光作种子光, 在 I 类非共线相位匹配条件下, 利用宽带的飞秒 BBO OPA, 在一定的实验参数下获得了 530—810 nm 放大的信号光, 以及 810 nm—1.7 μ m 波段范围的闲频光. 与此同时, 还获得了 410—700 nm 连续可调的闲频光的二次谐波, 其与闲频光层叠分布, 单脉冲能量为 2.6 μ J, 转换效率大于 5%. 仅利用单块晶体的飞秒 BBO OPA 就可以获得 410—810 nm 连续可调的飞秒脉冲输出, 从而为更多研究和应用的需要提供了重要的光源. 对飞秒光参量放大中闲频光二次谐波产生的条件也进行了理论分析.

关键词: 二次谐波, 闲频光, 非共线相位匹配, 飞秒光参量放大

PACC: 4265K, 4280, 4280W

1. 引 言

飞秒光参量放大 (OPA) 是获得高增益、窄脉冲宽度、宽调谐飞秒脉冲的一个重要方法, 在不少领域都得到了广泛应用. 尤其是利用 OPA 获得的可见光谱区微焦耳能量的飞秒脉冲, 对于非线性光学和超快时间分辨光谱测量均具有重要的意义. 1997 年 Wilhelm 等^[1]证明了当信号光的群速度与闲频光的群速度满足 $v_s = v_i \cos \Omega$ (Ω 为信号光波矢与闲频光波矢之间的夹角) 时, I 类相位匹配的 β -BaB₂O₄ (BBO) OPA 的参量带宽为最宽. 为满足这个条件, 对于蓝光抽运的 I 类 BBO OPA, 选取非共线角为 3.7° 时不仅可以得到宽的参量带宽, 而且可以很好地补偿抽运光和信号光之间的空间走离效应, 得到高的参量增益. 于是, 人们利用非共线角为 3.7° 的 I 类 BBO OPA 先后获得了可见光区脉冲宽度为 13.5—4 fs 的脉冲, 单脉冲能量为 1—7 μ J, 转换效率为 15%—20%, 调谐范围为 500—700 nm^[2-8].

但是, 由于相位匹配条件和非线性晶体透光范围的限制, 飞秒 OPA 的调谐范围有限. 例如, 用 400

nm 蓝光抽运的 I 类相位匹配的飞秒 BBO OPA, 参量光波长很难小于 460 nm. 然而, 在由宽带隙材料到生物分子的研究等许多应用领域中, 波长小于 460 nm 的蓝光和近紫外光都是非常有用的. 为了获得这个波段的光脉冲, 可将 OPA 输出的参量光再经过一块 BBO 晶体倍频. 但增加一块晶体后, BBO 晶体表面的损耗会降低倍频效率, 而且在波长调谐时需要同时转动 OPA 中的 BBO 晶体和倍频用的 BBO 晶体. 如果将 OPA 输出的闲频光倍频, 因为闲频光存在较大的角色散, 这将使装置变得更复杂. 为了避免这些不利因素的影响, 本文在没有附加任何倍频晶体的情况下, 仅利用 I 类非共线相位匹配的宽带飞秒 BBO OPA 的实验装置, 适当地选取实验参数, 在获得了放大的信号光的同时, 还获得了与闲频光层叠的闲频光的二次谐波, 其波长范围填补了抽运光与信号光波长之间的空档, 从而能够满足更多研究和应用的需要.

2. 基本原理

图 1 为 I 类相位匹配的飞秒 BBO OPA 中抽运光 (e 光)、信号光 (o 光) 和闲频光 (o 光) 的波矢矢量

* 国家重点基础研究发展规划 (批准号: G1999075201) \ 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20030056021) \ 高等学校优秀青年教师教学科研奖励计划资助的课题.

[†] 通讯联系人, E-mail: zhangrb@tju.edu.cn.

图. 图 1 中 θ 为抽运光波矢 k_p 与 BBO 晶体光轴之间的夹角, 即相位匹配角; α, β 分别为 BBO 晶体内信号光波矢 k_s 、闲频光波矢 k_i 与抽运光波矢 k_p 的夹角, 即非共线角.

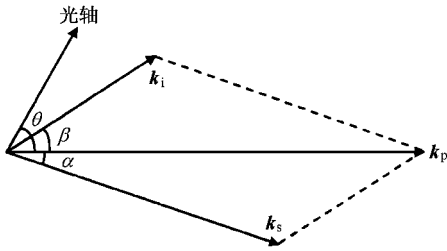


图 1 BBO 晶体内的非共线相位匹配矢量图

由于三波相互作用应满足能量守恒和动量守恒条件, 因此闲频光与抽运光波矢之间的夹角 β 为

$$\beta = \arcsin\left(\frac{n_s \lambda_i \sin \alpha}{n_i \lambda_s}\right), \quad (1)$$

式中 λ_s, λ_i 及 n_s, n_i 分别为信号光和闲频光的波长及在 BBO 晶体中的折射率. 由图 1 可知, 闲频光波矢与 BBO 晶体光轴之间的夹角 θ_i 为

$$\theta_i = \theta - \beta = \theta - \arcsin\left(\frac{n_s \lambda_i \sin \alpha}{n_i \lambda_s}\right). \quad (2)$$

当闲频光倍频时, 应满足的相位匹配条件为

$$n_d = n_i, \quad (3)$$

式中 n_d 为闲频光的二次谐波在 BBO 晶体中的折射率. 由于闲频光为寻常光, 闲频光的二次谐波为非常光, 所以折射率 n_d 为倍频时的相位匹配角 θ_d 的函数, 即

$$n_d = n_o n_e / \sqrt{n_o^2 \sin^2 \theta_d + n_e^2 \cos^2 \theta_d}, \quad (4)$$

式中 n_o 和 n_e 为闲频光的二次谐波在 BBO 晶体中的两个主折射率. 将(4)式代入(3)式可得闲频光倍频时的相位匹配角 θ_d 为

$$\theta_d = \arcsin \sqrt{\frac{n_e^2 (n_o^2 - n_i^2)}{n_i^2 (n_o^2 - n_e^2)}}. \quad (5)$$

θ_d 是闲频光波长和闲频光二次谐波波长的函数. 由于是共线倍频, 所以基频光波矢与晶体光轴的夹角应等于倍频光波矢与晶体光轴之间的夹角 θ_d . 由(2)和(5)式可以将 θ_i 和 θ_d 进行比较, 从而确定在飞秒 BBO OPA 产生闲频光的同时, 也产生闲频光二次谐波的条件.

图 2(a) 为飞秒 BBO OPA 在相位匹配角 θ 不同的情况下, 闲频光波矢与 BBO 晶体光轴之间的夹角

θ_i 和闲频光倍频时所需的相位匹配角 θ_d 随闲频光波长 λ_i 的变化曲线. 图 2(a) 中实线表示闲频光波矢与 BBO 晶体光轴之间的夹角 θ_i , 虚线表示倍频时闲频光波矢与 BBO 晶体光轴之间的夹角 θ_d . 图中抽运光波长 λ_p 为 405 nm, 非共线角 α 为 3.7° , 相位匹配角 θ 分别为 $28.5^\circ, 31^\circ, 32.5^\circ$. 图 2(b) 为飞秒 BBO OPA 在非共线角 α 不同的情况下, θ_i 和 θ_d 随 λ_i 的变化曲线. 图 2(b) 中抽运光波长 λ_p 仍为 405 nm, 相位匹配角 θ 为 31° , 非共线角 α 分别为 $2.2^\circ, 3.7^\circ, 5^\circ$.

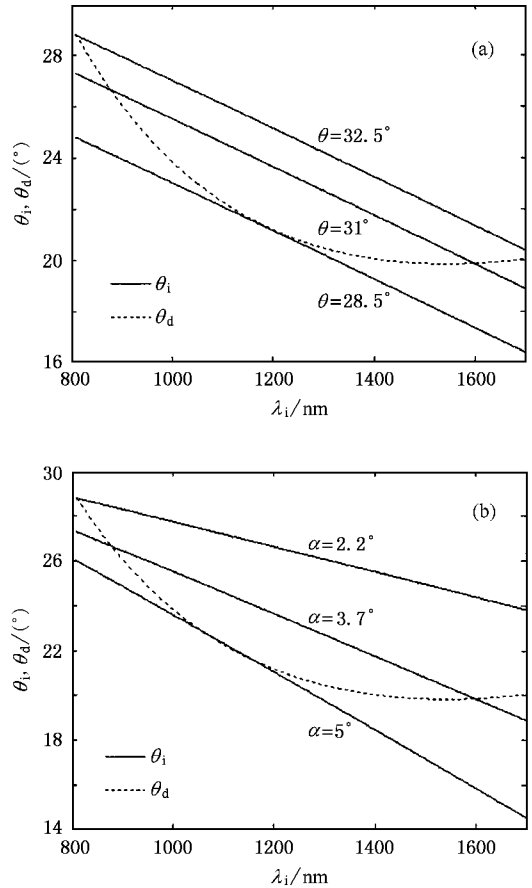


图 2 闲频光波矢与晶体光轴之间的夹角 θ_i 及闲频光倍频时所需的相位匹配角 θ_d (a) 相位匹配角 θ 不同, (b) 非共线角 α 不同

经过计算可知, 若抽运光波长 λ_p 为 405 nm, 当非共线角 α 为 3.7° 、相位匹配角 θ 为 31° 时, I 类相位匹配的飞秒 BBO OPA 中信号光的参量带宽最宽, 所以闲频光倍频的范围应最大. 在此条件下, 由图 2 可知, 当闲频光波长为 878 和 1597 nm 时, θ_i 和 θ_d 两条曲线有交点, 在交点处闲频光的倍频可以实现完全的相位匹配, 而在其他波长处闲频光的倍频均为

准相位匹配. 因此即使不另加倍频晶体, 仅利用 OPA 中的 BBO 晶体在产生放大的参量光的同时, 也可以产生闲频光的二次谐波, 从而实现波长的扩展.

3. 实验结果

图 3 为飞秒 BBO OPA 的实验装置示意图. 由 1 kHz 的钛宝石九通啁啾脉冲放大器输出中心波长为 810 nm, 脉冲宽度为 60 fs, 单脉冲能量为 200 μJ 的飞秒光脉冲, 经过玻璃片展宽至 90 fs, 再经过分束片 BM 后分为两束. 反射的一束光经过滤光片 VA 后, 单脉冲能量为 2 μJ , 再经过厚 3 mm 的 Al_2O_3 蓝宝石片产生超连续白光作为 OPA 的种子光. 透射的一束光经过厚 100 μm 、切割角为 29.2° 的 BBO 晶体倍频, 产生中心波长为 405 nm、脉冲宽度为 100 fs、单脉冲能量为 50 μJ 的脉冲, 经过滤光片 F 滤掉 810 nm 的基频光, 透过 405 nm 的倍频光作为 OPA 的抽运光. 抽运光与种子光以 6.2° 的非共线角(对应 BBO 晶体内约 3.7° 的非共线角)聚焦到厚 1 mm、切割角为 31° 的 BBO 晶体内, 在 I 类相位匹配条件下, 当抽运光与种子光在空间和时间上完全重合时种子光被放大. 调节延时即可获得连续可调的放大的信号光和闲频光. 同时还获得了与闲频光层叠的闲频光的二次谐波. 将观测屏垂直于抽运光的传播方向放置, 如图 3 所示. 在屏上观测到中心蓝色的亮斑为抽运光, 在抽运光右侧的亮斑为放大的信号光, 调节延时, 信号光的颜色在红、橙、黄、绿之间连续变化. 在抽运光左侧的亮斑为闲频光及其层叠的闲频光的二次谐波, 后者和闲频光一样存在较大的角色散, 它的颜色由内向外大致为紫、蓝、绿、红.

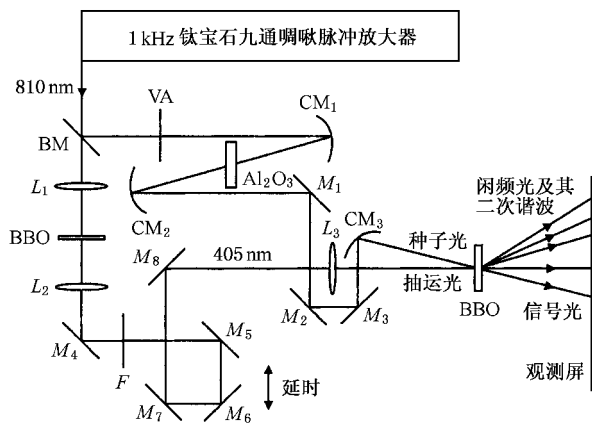


图 3 飞秒 BBO OPA 的实验装置示意图

图 4 是相位匹配角为 31°、非共线角为 3.7° 时获得的增益带宽最宽的放大信号光的光谱图. 图 4 中信号光中心波长约为 650 nm, 波长范围覆盖 530—810 nm, 增益带宽近 190 nm. 这种增益带宽的信号光可以支持小于 5 fs 的光脉冲. 此时信号光单脉冲能量为 10.8 μJ , 转换效率大于 21%. 若调节抽运光与种子光之间的延时, 则信号光的中心波长在 530—810 nm 之间连续变化, 但是它们的光谱宽度都比图 4 所示的光谱宽度窄, 而且参量增益比此时的低. 当改变相位匹配角或非共线角时, 信号光的增益带宽均变窄, 参量增益均降低. 因此, 产生图 4 所示光谱的条件为最佳选择条件.

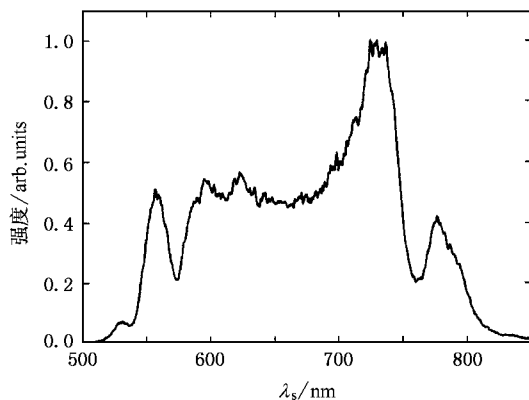


图 4 放大的信号光的光谱图

在信号光被放大的同时, 还获得了 810 nm—1.7 μm 波段范围的闲频光, 由于光谱仪测量范围的限制, 闲频光最大能够测到 1.2 μm . 与此同时, 我们还观察到与闲频光层叠分布的近紫外光和可见光. 由上述理论可知, 这应是闲频光的二次谐波. 在实验中倍频光及其对应的基频闲频光光谱被同时测得, 这更直观地验证了获得的与闲频光层叠分布的近紫外光和可见光就是闲频光的二次谐波.

与闲频光一样, 闲频光的二次谐波具有较大的角色散, 如图 5 所示. 图 5 中的虚线是在 BBO 晶体内闲频光的二次谐波与 OPA 抽运光的夹角, 实线是在 BBO 晶体外闲频光的二次谐波与 OPA 抽运光的夹角, 也就是实验中所观察到的闲频光二次谐波的角度分布. 由 6.3° 到 15.4° 的角度分布范围内, 闲频光二次谐波的颜色分布大致为紫、蓝、绿、红.

图 6 为信号光光谱宽度最宽时(如图 4 所示)获得的与闲频光层叠分布的闲频光二次谐波的光谱图. 图 6 中光谱的中心波长分别为 410, 450, 500, 550, 600, 650, 700 nm, 光谱宽度约为 20 nm, 由于使用

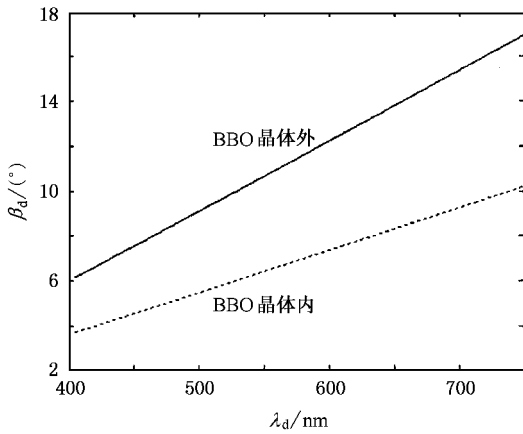


图 5 闲频光二次谐波的角分布

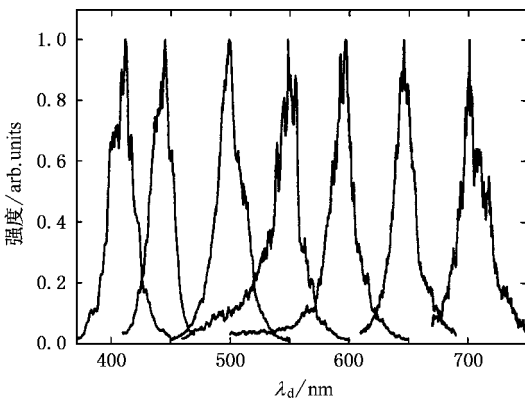


图 6 闲频光二次谐波的光谱图

的是光纤光谱仪,所以光谱宽度受光谱仪接收孔径的限制.实验测得闲频光二次谐波的调谐范围为410—700 nm,单脉冲能量为2.6 μJ ,转换效率大于5%.当调节抽运光与种子光之间的延时以及改变相位匹配角或非共线角时,由于信号光的光谱宽度变窄且参量增益降低,因此对应闲频光二次谐波的波长范围减小且光谱强度降低.

4. 结 论

我们采用1 kHz 钛宝石九通啁啾脉冲放大器的倍频蓝光作抽运光,超连续白光作种子光,利用I类相位匹配的飞秒BBO OPA,当相位匹配角为 31° ,非共线角为 3.7° 时,获得了530—810 nm连续可调的放大的信号光以及810 nm—1.7 μm 波段范围的闲频光.与此同时,在没有附加任何倍频晶体的情况下,还获得了410—700 nm连续可调的闲频光的倍频光,其与闲频光层叠分布,单脉冲能量为2.6 μJ ,转换效率大于5%.这样,我们仅利用单一的I类非共线相位匹配的飞秒BBO OPA的实验装置就获得了410—810 nm连续可调的飞秒脉冲输出,避免了另加倍频晶体带来的不利影响,为其他研究和应用的需要提供了重要的光源.此外,对飞秒光参量放大中闲频光二次谐波产生的条件也进行了理论分析.

- [1] Wilhelm T, Piel J, Riedle E 1997 *Opt. Lett.* **22** 1494
 [2] Cerullo G, Nisoli M, Silvestri S D 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 3616
 [3] Cerullo G, Nisoli M, Stagira S *et al* 1998 *Opt. Lett.* **23** 1283
 [4] Shirakawa A, Sakane I, Kobayashi T 1998 *Opt. Lett.* **23** 1292
 [5] Shirakawa A, Sakane I, Takasaka M *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2268

- [6] Kobayashi T, Shirakawa A 2000 *Appl. Phys. B* **70** 239
 [7] Baltuska A, Fuji T, Kobayashi T 2002 *Opt. Lett.* **27** 306
 [8] Sun T, Huang J S, Zhang W L *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2281 (in Chinese)[孙涛、黄锦圣、张伟力等 2002 物理学报 **51** 2281]



Idler second harmonic generation in femtosecond BBO optical parametric amplification^{*}

Ma Jing Zhang Ruo-Bing Liu Bo Zhu Chen Chai Lu Zhang Wei-Li Zhang Zhi-Gang Wang Qing-Yue

(College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering , Key Laboratory of Opto-electronics Information

Science and Technology of Ministry of Education , Tianjin University , Tianjin 300072 , China)

(Received 5 November 2004 ; revised manuscript received 17 January 2005)

Abstract

For femtosecond optical parametric amplification (OPA) pumped with a 400 nm blue laser , limited by phase-matched condition and nonlinear crystal transparent range , the tuning range of the output parametric laser is restricted , and the blue and the near UV lasers with wavelength less than 460 nm are difficult to obtain . In our experiment , we adopted the second harmonic of a Ti :sapphire nine-pass chirp pulse amplifier at 1 kHz repetition rate as the pump beam , and the white-light supercontinuum as the seed beam ; thus , by a type- I noncollinear phase-matched broad bandwidth β -BaB₂O₄ (BBO) OPA , with certain experimental parameters , the amplified signal beam from 530 nm to 810 nm and the idler beam from 810 nm to 1.7 μ m were obtained ; at the same time , the idler second harmonic from 410 nm to 700 nm was obtained also . The idler second harmonic was cascaded with the idler beam , its pulse energy was 2.6 μ J and the conversion efficiency was greater than 5% . Therefore , femtosecond pulses tuned continuously from 410 nm to 810 nm can be obtained by the BBO OPA with a single crystal only , thereby a useful source is provided for more investigations and applications . In this paper , we also have theoretically analyzed the generation condition of the idler second harmonic for femtosecond OPA .

Keywords : second harmonic , idler beam , noncollinear phase matching , femtosecond optical parametric amplification

PACC : 4265K , 4280 , 4280W

^{*} Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. G1999075201) , the Doctoral Program Foundation of Institution of Higer Education of China (Grant No. 20030056021) , and the Teaching and Research Award Program for Outstanding Young Teachers in Higher Education Institutions of China .