

## 基于氧化镁晶体中级联四波混频过程的紫外飞秒光脉冲产生

陈忠 华林强 张津 龚成 柳晓军

## Generation of tunable ultraviolet femtosecond pulse in MgO crystal by cascaded four wave mixing

Chen Zhong Hua Lin-Qiang Zhang Jin Gong Cheng Liu Xiao-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 064201 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201573

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201573>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

级联四波混频系统中纠缠增强的量子操控

Quantum manipulation of entanglement enhancement in cascaded four-wave-mixing process

物理学报. 2019, 68(9): 094205 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181837>

级联四波混频相干反馈控制系统量子纠缠特性

Quantum entanglement in coherent feedback system based on the cascaded four wave mixing processes

物理学报. 2020, 69(13): 130301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200042>

应用太赫兹焦平面成像方法研究氧化镁晶体在太赫兹波段的双折射特性

Birefringence characteristics of magnesium oxide crystal in terahertz frequency region by using terahertz focal plane imaging

物理学报. 2020, 69(20): 208702 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200766>

基于四波混频过程和线性分束器产生四组份纠缠

Generation of quadripartite entanglement based on four-wave mixing process and linear beam splitter

物理学报. 2020, 69(9): 090303 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200040>

极紫外飞秒光学频率梳的产生与研究进展

Generation and research progress of femtosecond optical frequency combs in extreme ultraviolet

物理学报. 2020, 69(22): 224203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200851>

桌面飞秒极紫外光原子超快动力学实验装置

A tabletop experimental system for investigating ultrafast atomic dynamics based on femtosecond extreme ultraviolet photons

物理学报. 2020, 69(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201035>

# 基于氧化镁晶体中级联四波混频过程的紫外飞秒光脉冲产生\*

陈忠<sup>1)2)</sup> 华林强<sup>1)2)†</sup> 张津<sup>1)2)</sup> 龚成<sup>1)2)</sup> 柳晓军<sup>1)2)‡</sup>

1) (中国科学院精密测量科学与技术创新研究院, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

2) (中国科学院大学, 北京 100080)

(2020 年 9 月 22 日收到; 2020 年 11 月 11 日收到修改稿)

紫外波段飞秒激光脉冲是研究超快化学和超快物理相关过程的重要工具, 实现波长可调谐的宽带紫外飞秒光脉冲将有助于推动超快动力学及相关领域的研究. 本文报道了以两束 400 nm 的飞秒光脉冲作为级联四波混频的抽运源, 在氧化镁晶体中产生 9 阶频率上转换和 5 阶频率下转换边带信号的实验结果. 边带波长范围从 350 nm 到 450 nm 连续可调谐, 这些边带信号的发散角和波长与级联四波混频理论预测结果吻合. 紫外边带相对于入射光的整体转化效率约为 1.2%. 同时, 高阶边带的光谱形状呈现高斯型, 其谱宽理论上支持傅里叶变换极限脉宽为 20—50 fs. 本文展示了一种高效产生波长可连续调谐的紫外飞秒光脉冲的便捷方法, 为基于紫外超短脉冲的相关研究提供了有效工具.

**关键词:** 紫外飞秒光脉冲, 级联四波混频, 氧化镁晶体

**PACS:** 42.65.-k, 42.65.Re, 42.65.Ky

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201573

## 1 引言

紫外飞秒激光脉冲在超快化学和超快物理研究领域有着十分重要的作用. 在超快化学研究中, 大量分子体系的成键轨道到反键轨道的跃迁位于紫外波段, 紫外波段飞秒光脉冲结合时间分辨光谱技术, 能够让人们直接观察极短时间尺度内分子的形成或解离过程<sup>[1]</sup>; 在超快物理研究中, 紫外波段飞秒脉冲结合多维相干光谱技术<sup>[2]</sup>, 能够研究半导体内激子动力学过程. 产生宽带可调谐的紫外飞秒光脉冲将有助于推动上述领域的研究.

受限于激光工作介质, 目前大部分商用飞秒激光器的基频波长都在近红外波段, 采用一种便捷的方式将激光器输出波长扩展到紫外波段无疑具有

重要的科学意义和应用前景. 目前, 基于非线性晶体将基频飞秒光脉冲的波长转换到紫外波段的主要方法包括: 倍频与和频<sup>[3]</sup>、光学参量放大<sup>[4]</sup>、级联四波混频<sup>[5–7]</sup>等. 其中级联四波混频由于其转化效率高、产生的边带波段范围宽、可调谐以及能够合成超短飞秒(甚至阿秒)脉冲等优点, 成为近年来的研究热点<sup>[8–33]</sup>. 例如: Crespo 小组<sup>[8]</sup>利用级联四波混频在玻璃片中观察到了 11 阶边带的产生, 并且将光谱从近红外延伸到了紫外波段. 另外他们还利用可调谐染料飞秒激光器输出的两种频率的激光, 在熔融石英中实现了更高的 20 阶的频率上转换边带, 最短波长为 209 nm, 并利用这些边带合成了 2.2 fs 的近单光学周期超短脉冲<sup>[9]</sup>. 文献<sup>[10–17]</sup>将级联四波混频方法扩展到了 BBO<sup>[10,11]</sup>、蓝宝石<sup>[12–14]</sup>、石英<sup>[15,16]</sup>、氟化钙<sup>[17]</sup>等各向异性材料中.

\* 国家自然科学基金(批准号: 11674356, 11527807)和中国科学院战略性先导科技专项(B类)(批准号: XDB21010400)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hualq@wipm.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: xjliu@wipm.ac.cn

他们通过拓展抽运光的光谱并引入适量的啁啾, 使产生的紫外脉冲输出能量稳定、波长可调谐, 提高了级联四波混频输出的多色飞秒光脉冲的实用性. Fang 等<sup>[18,19]</sup>还发展了和频级联四波混频技术, 他们利用一束 800 nm 基频脉冲和一束红外超连续白光脉冲, 在 BBO 晶体中实现了倍频与四波混频之间的级联效应, 拓展了紫外波段的光谱范围. 文献<sup>[20–33]</sup>则选择具有拉曼活性的晶体, 实现了更高的边带转化效率并且产生了更高的阶次. 这些研究工作推动了基于级联四波混频技术产生宽带紫外飞秒光脉冲的发展. 然而, 这些级联四波混频研究所采用的驱动光源都在近红外或者可见波段, 所产生的紫外飞秒光脉冲对应很高的阶次. 在级联四波混频中, 每一阶信号光由上一阶信号光和两束抽运光共同产生, 边带阶次越高, 产生效率越低. 因此, 利用短波长的驱动光进行级联四波混频, 将降低紫外波段边带对应的阶次, 有助于提高紫外边带的产生效率<sup>[9,12,13,16]</sup>.

本文报道了采用两束 400 nm 的飞秒激光作为级联四波混频的抽运源来产生波长可调谐的紫外飞秒光脉冲的研究成果. 利用紫外脉冲驱动晶体介质产生级联四波混频要求所用晶体具有紫外波段透射率高、3 阶非线性极化率大和带隙宽度宽等特性. 本实验选取氧化镁 (MgO) 晶体作为工作介质, MgO 晶体的紫外波段透射率为 92%, 3 阶非线性极化率为  $\chi^{(3)} = 7.3 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \cdot \text{erg}^{[34]}$ , 是紫外波段透射率大于 90% 的晶体材料中, 3 阶非线性极化率最大的一种. 此外, 其带隙宽度为 7.8 eV, 有较

高的损伤阈值. 实验中级联四波混频产生的飞秒光脉冲覆盖了 350–450 nm 波段, 实现了直接倍频难以达到的光谱范围. 紫外边带相对于入射光的整体转化效率约为 1.2%, 优于已有报道结果<sup>[9,12,16]</sup>, 其中 390 nm 的紫外边带效率约为 0.7%, 高于已有实验中同波长边带的产生效率<sup>[9]</sup>. 本方案为高效产生波长可连续调谐的紫外飞秒光脉冲提供了一种有效途径.

## 2 实验装置

实验装置如图 1 所示. 实验中所使用的飞秒激光器 (Legend HE+, Coherent Inc.) 由一个振荡器和一个再生放大器组成, 它输出的光脉冲参数如下: 最大能量为 4.8 mJ, 中心波长为 792 nm, 重复频率为 1 kHz, 脉宽约为 35 fs. 激光器输出的脉冲经分束镜后被分为两束, 其中反射的部分经透镜聚焦后入射到 0.6 mm 厚的第 I 类相位匹配 BBO 中. 通过优化基频光的入射角度和晶体的光轴方向, 获得了功率约为 180 mW 的倍频脉冲, 其脉宽估算约为 140 fs. 倍频光经过透镜准直后, 平行入射至透 800 nm 反 400 nm 的二色镜上. 二色镜滤掉基频成分, 以排除基频对级联四波混频实验的影响. 400 nm 光经过偏振方向调节后, 被分光棱镜 (PBS) 分成两路: 一路经过  $f = 20 \text{ cm}$  的透镜后, 聚焦在 MgO 晶体上; 另一路则经过恰当的偏振调节和延时调节, 同样被  $f = 20 \text{ cm}$  的透镜聚焦于 MgO 晶体上. 两束光的焦点以非共线方式在 MgO

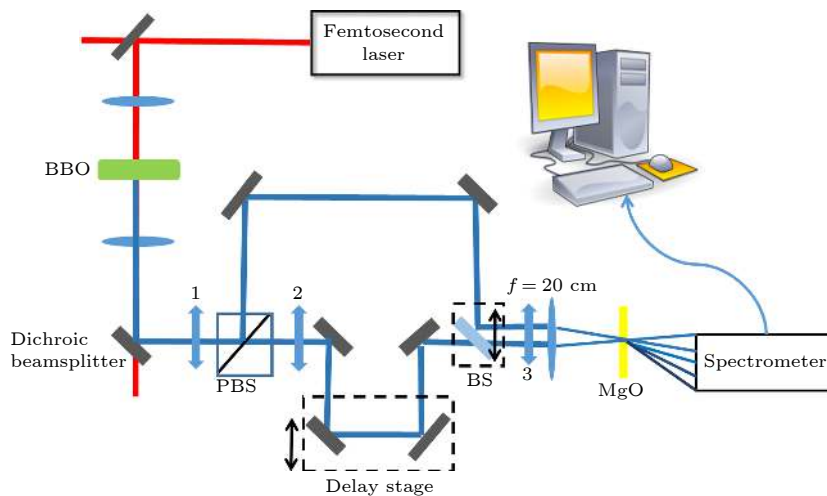


图 1 实验装置图 (PBS 为偏振分束器; 1, 2, 3 为半波片; BS 为分光镜)

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup (PBS represents polarization beam splitter; 1, 2, 3 represent half wave plates; BS represents beam splitter).

晶体中重合, 通过调节两束光在  $f = 20$  cm 透镜上的间距对其夹角进行精密控制, 两束光的偏振方向由透镜前的半波片 (图 1 中编号为 3) 控制. 实验采用的 MgO 晶体的厚度为 0.2 mm, 晶向为  $\langle 100 \rangle$ , 两面抛光. 实验产生的四波混频边带信号通过宽波段的光谱仪 (QE65pro 和 Maya2000pro, Ocean Optics) 进行测量, 并实时记录到电脑中, 以便于实验条件的实时优化和后期数据处理.

### 3 实验结果与分析

实验首先测量了钛宝石激光器输出的基频光的光谱, 如图 2(a) 所示, 其中心波长为 792 nm, 光谱范围为 760—820 nm. BBO 晶体作为倍频介质, 通过调节其光轴角度, 可以实现倍频光的中心波长连续调谐. 这种方式产生的倍频光的光谱范围约为 380—410 nm, 如图 2(b) 所示. 本文将倍频效率最高时的光轴角度设为  $0^\circ$ , 可产生倍频的光轴角度范围为  $\pm 10^\circ$ . 注意到图中光谱在 395 nm 附近出现干涉条纹, 它可能来源于 BBO 晶体中倍频光与和频光之间的干涉.

在级联四波混频实验中, 使用的两束 400 nm 抽运光的功率分别为 14 mW 和 9 mW, 偏振为 s 偏振. 经过透镜聚焦后, 光斑直径约为 170  $\mu\text{m}$ , 0.2 mm 厚的 MgO 基片被放置于焦点附近, 两束光在 MgO 晶体中实现时间和空间上的重合. 实验发现, 两束抽运光在空气中的夹角为  $0.9^\circ$ — $2.8^\circ$  时, 均有四波混频信号产生. 相对延迟为零时, 发生比较明显的自衍射 [20], 当两束抽运光的夹角为  $1.3^\circ$ 、相对延迟为 80 fs 左右时, 级联四波混频产生的边

带数量最多, 且边带信号强度最强. 在上述条件下产生了 9 阶频率上转换边带和 5 阶频率下转换边带, 抽运光的左侧为频率下转换边带, 右侧为频率上转换边带, 从左到右波长依次减小. 实验结果表明斯托克斯一侧的边带数目较少, 这是由于当阶数增加时, 产生级联四波混频信号所需的波矢量  $|\mathbf{k}(m)|$  在反斯托克斯和斯托克斯侧都会增大 [7], 对于反斯托克斯光束, 波长随阶数的增加而减小, 与  $|\mathbf{k}(m)|$  长度增大的要求相一致. 在此情形下, 高阶边带也可以满足一定的相位匹配条件. 与此相对, 斯托克斯光束的波长随阶数的增加而增大, 红移波长不满足增大  $|\mathbf{k}(m)|$  长度的要求. 因此, 斯托克斯信号的相位失配随阶数的增加而迅速增加, 使得斯托克斯侧的边带数量比反斯托克斯侧的少. 本文将第  $m$  阶的频率上 (下) 转换的边带命名为  $\text{AS}^m$  ( $\text{S}^m$ ). 其中,  $\text{AS}^2$  到  $\text{AS}^7$  投影到白色纸片上的照片如图 3(a) 所示. 这些边带沿着不同的散射角发散, 利用光谱仪在不同位置对边带信号进行收集和测量, 得到每一阶边带的归一化光谱, 如图 3(b) 和图 3(c) 所示, 它们的波长范围为 350—450 nm. 其中, 高阶边带在 400 nm 左右的次峰来自于抽运光的杂散信号. 同时, 注意到四波混频信号在空间上并非绝对分离, 这使得在信号的主峰旁边产生了其他信号的小峰.

级联四波混频过程产生边带的中心波长和发散角满足频率对应关系和相位匹配关系 [7]:

$$\omega_{\text{AS}^m} = (m+1)\omega_1 - m\omega_2, \quad (1a)$$

$$\mathbf{k}_{\text{AS}^m} = (m+1)\mathbf{k}_1 - m\mathbf{k}_2, \quad (1b)$$

其中,  $\omega_1, \omega_2, \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$  分别为两束抽运光各自的角频率和波矢量;  $\omega_{\text{AS}^m}, \mathbf{k}_{\text{AS}^m}$  分别为  $\text{AS}^m$  边带的角频

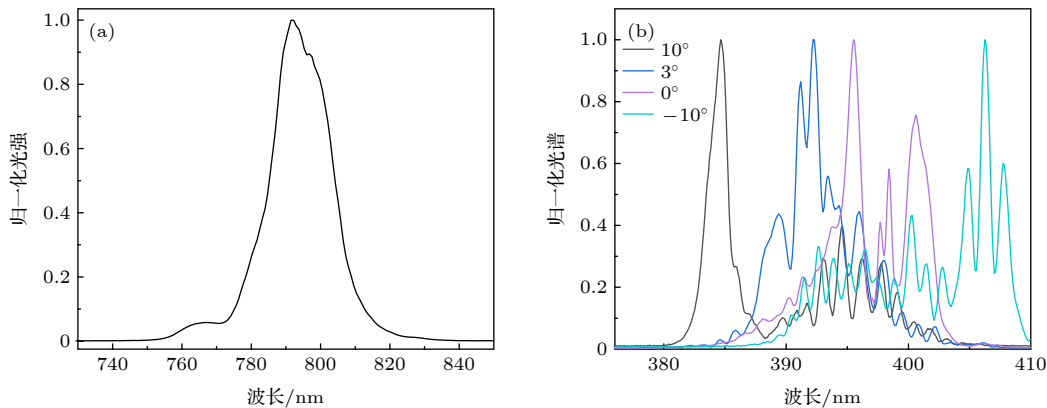


图 2 (a) 钛宝石激光器输出的基频光光谱; (b) BBO 在不同光轴角度下的倍频光光谱

Fig. 2. (a) Output spectrum of Ti-Sapphire laser; (b) spectra of the second harmonic generation under different BBO orientations.



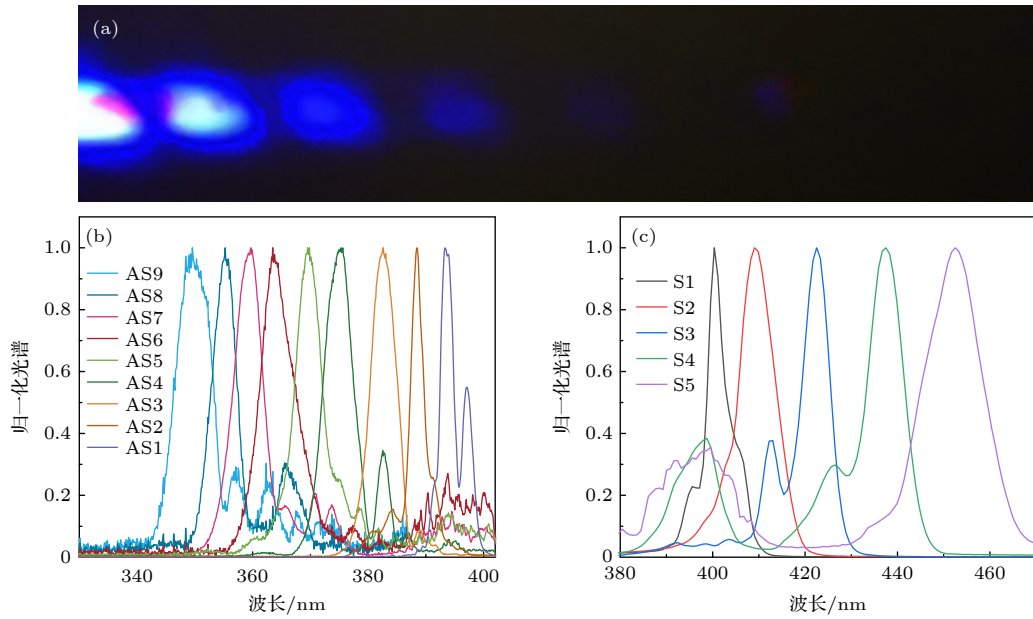


图 3 (a) AS2 到 AS7 边带的照片; (b) AS1 至 AS9 边带的光谱; (c) S1 至 S5 边带的光谱

Fig. 3. (a) Photographs of AS2 to AS7; (b) spectra of sidebands from AS1 to AS9; (c) spectra of sidebands from S1 to S5.

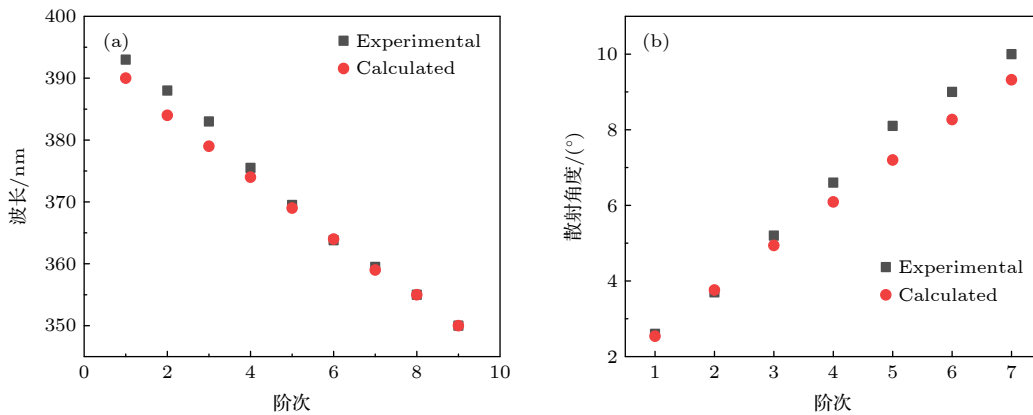


图 4 (a) AS1 到 AS9 边带的理论计算中心波长 (红色圆圈) 和实验测量 (黑色方块) 之间的对比; (b) AS1 到 AS7 边带的理论计算散射角 (红色圆圈) 和实验测量 (黑色方块) 之间的对比

Fig. 4. (a) Comparison of calculated results (red circles) and experimental data (black squares) of central wavelengths of AS1 to AS9; (b) comparison of calculated results (red circles) and experimental data (black squares) of scattering angle of AS1 to AS7.

率和波矢量. 利用抽运光的作用波长: 395.0 nm 和 400.6 nm 及抽运光之间的夹角, 通过 (1a) 式和 (1b) 式及 MgO 的 Sellmeier 方程, 计算得到 AS1 到 AS9 的理论中心波长分别为: 390, 384, 379, 374, 369, 364, 359, 355 和 350 nm, 这和实验测量的结果吻合, 如图 4(a) 所示, 其中低阶的差异来源于自相位调制和交叉相位调制<sup>[35]</sup>. 同样, 计算得到 AS1 到 AS7 的理论散射角度分别为: 2.54°, 3.76°, 4.93°, 6.08°, 7.18°, 8.25° 和 9.29°. 图 4(b) 为其与实验测量结果的对比, 可以看到散射角度和理论预测的结果在低阶时符合得很好, 在高阶的情况下有

少量偏移. 此外, 产生的边带在平面上也有小的弯曲, 波长越短的边带越往上偏移. 这是因为实验中晶体的光轴与入射光所在平面存在微小夹角, 对于 MgO 样品, 波长越短对应的折射率越大, 当不同波长的边带以不同角度出射时, 波长越短、出射角度越大的光束将产生更明显的折射, 这导致了高阶边带的偏移并且散射角度比预测角度大. 类似现象也出现在以钨酸铅和金刚石为介质的实验中<sup>[20–22]</sup>.

为考察此方案产生的紫外飞秒光脉冲的特征, 本实验测量了 400 nm 光激发 MgO 晶体所产生边

带的功率. 测量得到 AS1 到 AS7 的功率分别为 169.3, 85.7, 17.8, 5.2, 1.6, 0.2 和 0.032  $\mu\text{W}$ . 紫外边带相对于入射光的整体转化效率约为 1.2%, 其中, 390 nm (AS1) 紫外边带的产生效率约为 0.7%. 在红外光或可见光驱动级联四波混频产生宽带紫外飞秒光脉冲的实验中<sup>[9,12,16]</sup>, 已报道的紫外波段整体转化效率最高约为 0.7%, 390 nm 边带产生效率约为 0.3%<sup>[9]</sup>. 但注意到本实验中高阶边带效率偏低, 边带的整体带宽有限, 如何进一步提升高阶边带的转换效率、扩展边带的整体带宽有待进一步研究. 同时, 实验中还测量了边带的谱宽, 通过对每一阶边带的光谱进行高斯拟合, 发现 AS3 到 AS9 的光谱形状十分接近高斯线型, 图 5(a) 为 AS3 边带高斯拟合的结果. 拟合 AS3 至 AS9 边带得到的光谱半高全宽分别为 5.1, 5.7, 5.6, 6.7, 5.6, 4.6 和 6.5 nm. 根据计算, AS3 到 AS9 对应的傅里叶转换极限脉宽分别为 42, 36, 35, 28, 33, 39, 27 fs.

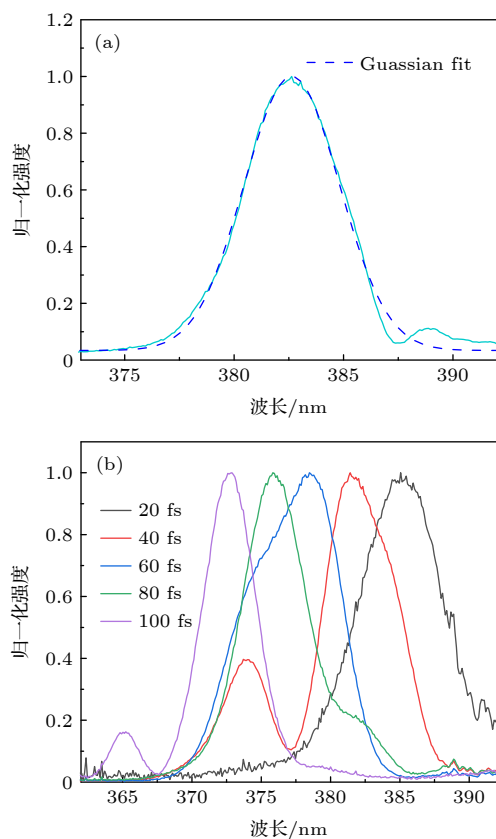


图 5 (a) AS3 边带光谱 (实线) 及其高斯拟合 (虚线); (b) 不同延时下 AS4 边带的光谱, 图中的光谱对应的延时分别为 20, 40, 60, 80, 100 fs

Fig. 5. (a) Spectra of the AS3 sideband (solid curve) and its Gaussian fitting (dashed curve); (b) spectra of the AS4 sideband at several specific time delays, i.e. 20, 40, 60, 80, and 100 fs.

此外, 通过在驱动光脉冲中引入合适啁啾, 利用改变脉冲到达样品的延迟时间能够改变两个脉冲相互作用波长的原理, 可以实现以调节延时的方式来便捷地调谐产生边带的中心波长. 在本实验中, 通过调节钛宝石激光器的脉冲压缩光栅引入约  $-400 \text{ fs}^2$  的啁啾, 结合对两束抽运光的延时控制实现了对边带中心波长的有效调控. 以 AS4 为例, 本文给出了几个特定延迟时间条件下的该边带波长的相对变化, 如图 5(b) 所示. 可以看出, 在两束脉冲相互作用产生边带信号的时间范围内, AS4 边带的中心波长可以从 373 nm 到 385 nm 之间连续调谐. 利用产生的全部边带, 可以实现波长从 350 nm 到 450 nm 全覆盖.

## 4 结 论

本文以两束 400 nm 的飞秒光脉冲作为级联四波混频的驱动光源, 在 0.2 mm 的 MgO 介质中产生了一系列频率上转换和频率下转换的飞秒脉冲. 这些边带的波长和散射角符合理论预测, 光谱范围从 350 nm 到 450 nm 全覆盖. 其中, 紫外边带的产生效率约为 1.2%, 高于用近红外光或者可见光驱动产生紫外边带的效率. 通过调控两束 400 nm 脉冲的相对延时, 可实现波长宽带调谐. 同时, AS3 到 AS9 边带的光谱形状呈现高斯型, 这些脉冲支持的理论极限宽度为 20—50 fs. 本文为高效产生波长连续可调谐的紫外飞秒光脉冲提供了一种有效途径, 有助于推动超快化学与超快物理方面的相关研究.

## 参考文献

- [1] Demtroder W (translated by Ji Y) 2012 *Laser Spectroscopy* (Vol.2): *Experimental Techniques* (Beijing: Science Press) pp466–468 (in Chinese) [戴姆特瑞德 W 著 (姬扬 译) 2012 激光光谱学(第2卷): 实验技术 (北京: 科学出版社) 第466—468页]
- [2] Bruder L, Bangert U, Binz M, Uhl D, Vexiau R, Bouloufa M N, Dulieu O, Stienkemeier F 2018 *Nat. Commun.* **9** 2519
- [3] Yao J Q 1995 *Nonlinear Optical Frequency Conversion and Tunable Lasers* (Beijing: Science Press) pp146–148 (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146—148页]
- [4] Ye P X 2007 *Nonlinear Optical Physics* (Beijing: Peking University Press) pp99–103 (in Chinese) [叶佩弦 2007 非线性光学物理 (北京: 北京大学出版社) 第99—103页]
- [5] He J P, Liu J, Kobayashi T 2014 *Appl. Sci.* **4** 444
- [6] Weigand R, Crespo H M 2015 *Appl. Sci.* **5** 485
- [7] Liu J, Kobayashi T 2010 *Sensors* **10** 4296
- [8] Crespo H M, Mendonça J T, Dos S A 2000 *Opt. Lett.* **25** 829

- [9] Weigand R, Mendon J T, Crespo H M 2009 *Phys. Rev. A* **79** 063838
- [10] Liu J, Zhang J, Kobayashi T 2008 *Opt. Lett.* **33** 1494
- [11] Wang P, Shen X, Zeng Z N, Liu J, Li R X, Xu Z Z 2019 *Opt. Lett.* **44** 3952
- [12] Liu J, Kobayashi T 2008 *Opt. Express* **16** 22119
- [13] Liu J, Kobayashi T, Wang Z 2009 *Opt. Express* **17** 9226
- [14] Wang P, Liu J, Li F J, Shen X, Li R X 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 201901
- [15] Liu J, Kobayashi T 2010 *Opt. Commun.* **283** 1114
- [16] Wang P, Liu J, Li F J, Shen X, Li R X 2015 *Photon. Res.* **3** 210
- [17] Liu Q F, Li F J, Liu J 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 094209 (in Chinese) [刘奇福, 李方家, 刘军 2014 物理学报 **63** 094209]
- [18] Liu W M, Zhu L D, Fang C 2012 *Opt. Lett.* **37** 3783
- [19] Liu W M, Zhu L D, Wang L, Fang C 2013 *Opt. Lett.* **38** 1772
- [20] Zhi M C, Sokolov A V 2008 *New J. Phys.* **10** 025032
- [21] Zhi M C, Sokolov A V 2007 *Opt. Lett.* **32** 2251
- [22] Wang K, Zhi M C, Hua X, Strohmer J, Sokolov A V 2014 *Appl. Opt.* **53** 2866
- [23] Wang K, Alexandra Z, Zhi M C, Hua X, Sokolov A V 2015 *Appl. Sci.* **5** 145
- [24] Shutova M, Shutov A D, Zhdanova A A, Thompson J V, Sokolov A V 2019 *Sci. Rep.* **9** 1565
- [25] Takahashi J I, Matsubara E, Arima T, Hanamura E 2003 *Phys. Rev. B* **68** 155102
- [26] Takahashi J I, Kawabe Y, Hanamura E 2004 *Opt. Express* **12** 1185
- [27] Matsubara E, Inoue K, Hanamura E 2005 *Phys. Rev. B* **72** 134101
- [28] Matsuki H, Inoue K, Hanamura E 2007 *Phys. Rev. B* **75** 024102
- [29] Inoue K, Kato J, Hanamura E, Matsuki H, Matsubara E 2007 *Phys. Rev. B* **76** 041101(R)
- [30] Takahashi J I, Keisuke M, Toshirou Y 2006 *Opt. Lett.* **31** 1501
- [31] Matsubara E, Sekikawa T, Yamashita M 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 071104
- [32] Sokolov A V, Harris S E 2003 *J. Opt. B* **5** R1
- [33] Zhi M C, Wang X, Sokolov A V 2008 *Opt. Express* **16** 12139
- [34] Shea J J 2004 *IEEE Electri. Insul. M.* **20** 46
- [35] Dharmadhikari J A, Dota K, Kritika D, Mathur D, Dharmadhikari A K 2016 *Appl. Phys. B* **122** 140

# Generation of tunable ultraviolet femtosecond pulse in MgO crystal by cascaded four wave mixing<sup>\*</sup>

Chen Zhong<sup>1)2)</sup> Hua Lin-Qiang<sup>1)2)†</sup> Zhang Jin<sup>1)2)</sup>

Gong Cheng<sup>1)2)</sup> Liu Xiao-Jun<sup>1)2)‡</sup>

1) (*State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Innovation Academy for Precision Measurement Science and Technology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*)

( Received 22 September 2020; revised manuscript received 11 November 2020 )

## Abstract

Ultraviolet femtosecond laser pulse is an important tool in studying ultrafast chemical and physical processes. Realizing broadband ultraviolet laser pulses with a wide tunable range would significantly facilitate the study of ultrafast processes. As an effective and convenient method, the cascaded four-wave mixing (CFWM) has been widely adopted to generate broadband and tunable ultraviolet femtosecond laser pulses. In this work, we carry out CFWM in MgO crystal by using two 400-nm pulses to generate tunable ultraviolet femtosecond pulse. The MgO crystal is chosen due to its high third-order nonlinear susceptibility, large band gap and high transmittance in the ultraviolet region. In the experiment, nine frequency up-converted and five frequency down-converted sidebands are observed. The measured wavelength and scattering angle of each sideband are consistent with the CFWM theory predictions. The wavelength range of the sidebands covers 350–450 nm. The total conversion efficiency of the ultraviolet sidebands is 1.2%, which is higher than the reported values with visible/near infrared driven lasers. Meanwhile, the spectra of the high-order sidebands present a Gaussian profile and can support a Fourier-transform-limited pulse duration of less than 50 fs. Besides, the central wavelengths of the sidebands can be effectively tuned by adjusting the time-delay between the two pre-chirped pump pulses. Our study provides an efficient and convenient scheme to generate short ultraviolet femtosecond pulses with a wide tunable range.

**Keywords:** ultraviolet femtosecond pulse, cascaded four wave mixing, MgO crystal

**PACS:** 42.65.-k, 42.65.Re, 42.65.Ky

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201573

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11674356, 11527807) and the Strategic Priority Research Program (B) of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDB21010400).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [hualq@wipm.ac.cn](mailto:hualq@wipm.ac.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [xjliu@wipm.ac.cn](mailto:xjliu@wipm.ac.cn)