

# 飞秒激光脉冲倍频的实验研究

林晓宣<sup>1</sup>, 陈黎明<sup>2</sup>, 李玉同<sup>1</sup>, 徐妙华<sup>1</sup>, 远晓辉<sup>3</sup>, 刘峰<sup>1</sup>, 张翼<sup>1</sup>, 李汉明<sup>1</sup>, 王兆华<sup>1</sup>, 刘峰<sup>1</sup>, 魏志义<sup>1</sup>, 赵卫<sup>3</sup>, 张杰<sup>1</sup>

1. 中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100080
2. 日本原子能研究所高等光子研究中心, 京都 619-0215, 日本
3. 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室, 西安 710068

[摘要] 利用 2 mm KDP 晶体对中心波长 790 nm、脉冲宽度 75 fs、晶体表面强度约  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> 的超短超强激光脉冲进行了倍频实验研究。通过对基频脉冲能量及频率啁啾的优化, 可以获得高于 40% 的能量转化效率。观测了基频脉冲频率啁啾对倍频光产生的影响, 发现激光脉冲啁啾为零时对应的倍频转化效率最高; 对于相同的光栅相对位置, 正啁啾基频脉冲的倍频转化效率高于负啁啾。

[关键词] 非线性光学; 飞秒激光脉冲; 倍频

[中图分类号] O437 [文献标识码] A [文章编号] 1000-7857(2007)18-0017-04

## Experimental Study on Frequency Doubling of Femtosecond Pulses

LIN Xiaoxuan<sup>1</sup>, CHEN Liming<sup>2</sup>, LI Yutong<sup>1</sup>, XU Miaohua<sup>1</sup>, YUAN Xiaohui<sup>3</sup>, LIU Feng<sup>1</sup>, ZHANG Yi<sup>1</sup>, LI Hanming<sup>1</sup>, WANG Zhaohua<sup>1</sup>, LIU Feng<sup>1</sup>, WEI Zhiyi<sup>1</sup>, ZHAO Wei<sup>3</sup>, ZHANG Jie<sup>1</sup>

1. Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China
2. Advanced Photon Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute, Kyoto 619-0215, Japan
3. State Key Laboratory of Transient Optic Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Science, Xi'an 710068, China

Abstract: This paper studies the frequency doubling of femtosecond laser pulses with a wavelength of 790 nm using a 2 mm thick KDP crystal. The energy conversion efficiency is better than 40% after the energy and chirp of the fundamental harmonic are optimized. Moreover, the frequency doubling is analyzed as a function of laser pulse frequency chirp. It is found that the frequency doubling conversion efficiency reaches a maximum when there is no frequency chirp; for the same grating position, the frequency conversion efficiency is better by using positively chirped fundamental laser pulses than by using negatively chirped pulses.

Key Words: nonlinear physics; femtosecond laser pulses; frequency doubling

CLC Number: O437 Document Code: A Article ID: 1000-7857(2007)18-0017-04

### 0 引言

啁啾脉冲放大(CPA)技术的出现使激光脉冲的峰值

功率有了显著的提高, 也为人们带来了一个全新的研究领域——强场物理。目前, 聚焦后的激光功率密度最

收稿日期: 2007-08-10

基金项目: 国家自然科学基金项目(10474134, 10575129, 10675164, 60621063, 10334110, 10510490), 国家高技术惯性约束聚变主题, 日本 Kakenhi 主题资助项目, 国家重点基础研究发展计划(973)项目(2007CB815102)

作者简介: 林晓宣, 北京 603 信箱 33 分箱中国科学院物理研究所, 研究方向为超短超强激光与物质相互作用;

E-mail: linxiaoxuan@aphy.iphy.ac.cn

张杰(通讯作者), 北京 603 信箱 33 分箱中国科学院物理研究所, 研究员, 研究方向为 X 射线激光和强场物理;

E-mail: jzhang@aphy.iphy.ac.cn

高可达  $10^{22} \text{ W/cm}^2$ 。这样的超短超强激光有很多应用,如“快点火”激光聚变<sup>[1]</sup>、超快 X 射线的产生<sup>[2]</sup>等。但是由于一些原因(如振荡器漏光预脉冲、自发辐射放大等),在激光主脉冲之前会有“预脉冲”存在。在超短超强激光脉冲与物质相互作用中,预脉冲会在主脉冲之前到达物质表面并使其发生电离,使得激光与物质作用过程中的等离子体密度梯度标长变长,密度变低(成为晕区等离子体),从而改变超短超强激光与物质相互作用的机制和特性。使用非线性晶体产生二次谐波(SHG)可以抑制预脉冲,减弱它对等离子体的影响。另一方面,现有的固体飞秒激光多数工作在近红外和红外波段,然而一些超快应用研究需要较短波长的飞秒光源,因此人们对于 SHG 十分感兴趣。实验研究证明,使用非线性晶体获得倍频是一种提高脉冲对比度的简便易行方法。

对飞秒激光脉冲的倍频过程已有许多理论及实验研究。人们关心的焦点问题是:如何在尽可能好地保持倍频脉冲包络以及倍频光谱特性的情况下,获得最大的倍频转化效率。Chien<sup>[3]</sup>等报道了使用 4 mm KDP 晶体对波长 1 053 nm、强度  $400 \text{ GW/cm}^2$ 、脉宽 500 fs 的激光脉冲进行倍频实验,得到的能量转化效率达 80%; Krylov<sup>[4]</sup>等分别使用长度为 3, 5, 10, 40 mm 的 KDP 晶体对波长 780 nm、强度  $150 \text{ GW/cm}^2$ 、脉宽 150 fs 的激光脉冲进行了倍频的实验,发现能量转化效率低于 50%; Tamaki<sup>[5]</sup>等使用 1 mm 厚的 KDP 晶体对波长 800 nm、强度  $200 \text{ GW/cm}^2$ 、脉宽 100 fs 的激光脉冲进行了倍频实验,产生的倍频脉冲能量转化效率为 20%; Queneuille<sup>[6]</sup>等用变形镜对波前进行修正,利用 4 mm 厚的 KDP 晶体对波长 1 053 nm、强度  $200 \text{ GW/cm}^2$ 、脉宽 400 fs 的激光脉冲进行倍频,获得了 55% 的倍频能量转化效率,所得倍频脉冲的对比度达  $10^9$ 。从上面列举的研究情况可见,对于 ps 或亚 ps 的脉冲,人们能够较容易地获得高于 50% 的倍频能量转化效率,但对于 100 fs 的脉冲转化效率较低。

超强飞秒激光脉冲的倍频过程有两个主要特点。

当飞秒脉冲在非线性介质中传播的时候,由于基频光与倍频光具有不同的群速度,这两个激光脉冲将在空间上有逐渐分离的趋势,即群速度失配(GVM)。GVM 将引起倍频脉宽的展宽,不利于倍频脉冲时间性质的保持。对于 100 fs 以下的飞秒脉冲,GVM 的影响尤为显著。除了 GVM 之外,自身群速度色散(GVD)也会起到加宽脉冲宽度的作用,但是本文的分析将表明:对于脉宽小于 100 fs 的脉冲,GVD 引起的脉冲展宽可以忽略。由于激光具有很高的光场强度,如此强的电场使得高阶非线性效应不能被忽略,比如三阶非线性极化率引发的自相位调制效应(SPM)将对倍频激光脉冲的光谱特性和转化效率产生一定的影响。影响倍

频过程的主要因素有相位匹配、基频脉冲强度、基频脉冲的频率啁啾(压缩室中两光栅的相对位置)以及晶体长度 L。在其他条件固定时,晶体长度 L 越长,GVM 引起的倍频脉冲的展宽越大,不利于倍频脉冲时间特性的保持;另一方面,晶体长度 L 越长,基频光通过二阶非线性效应向倍频光转化得越充分,能量转化效率越高。所以,晶体长度既不能太短也不能太长。本文实验中选用的是 2 mm 的 KDP 晶体,零啁啾时的基频激光脉冲宽度约 75 fs,压缩后晶体表面的激光脉冲平均强度的量级为  $10^{11} \text{ W/cm}^2$ 。实验中,通过抑制啁啾并调节基频激光脉冲的能量,获得了最高达 44% 的倍频能量转化效率。为了研究基频光脉冲频率啁啾对 SHG 的影响,本文测量了倍频能量转化效率与基频脉冲频率啁啾之间的依赖关系,结果发现零啁啾时对应最高的倍频转化效率,并且在光栅相对位置相同时,正啁啾基频脉冲的 SHG 转化效率高于负啁啾时的值。另外,还发现倍频光谱的特性与基频激光脉冲啁啾有一定的依赖关系。

## 1 实验安排

实验是在中国科学院物理研究所极光二号(XL-1-1)<sup>[7]</sup>掺钛蓝宝石超短超强激光装置上进行的。从激光压缩室中输出的基频激光频率 10 Hz,中心波长约为 790 nm,零啁啾时基频激光脉冲宽度约 75 fs。当激光脉冲能量约 300 mJ 时,激光脉冲平均强度约  $6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 。SHG 所使用的倍频晶体为 2 mm 厚的第一类相位匹配 KDP 晶体。通过调节入射激光与 KDP 晶体表面法线之间的夹角实现相位匹配。在经过 KDP 晶体的前后,分别用标定过的二极管及能量计测量基频和倍频光脉冲的能量,并使用光谱仪测量倍频光光谱。通过单次自相关仪可以测量基频激光脉冲宽度随光栅相对位置的依赖关系,脉冲宽度最短时为零啁啾的位置,并以此处作为光栅相对位置的零点。本文主要进行了 3 个方面的测量:固定光栅相对位置为零点,测量不同能量的基频光入射时倍频脉冲的能量转化效率;固定基频激光能量,测量不同啁啾时的倍频激光脉冲能量;固定入射基频激光能量,测量不同啁啾时的倍频脉冲光谱。

## 2 实验结果及讨论

图 1 所示为基频激光脉冲宽度与光栅相对位置之间的依赖关系。基频激光脉冲宽度最短处的零啁啾点定为光栅相对位置零点。从图中可以看出,零啁啾时基频激光脉冲宽度约为 75 fs,光栅相对位置越偏离零啁啾位置脉冲宽度越长。固定光栅相对位置保持基频脉冲啁啾为零,调整基频激光脉冲能量从 50 mJ 增加到 325 mJ,测量不同能量下的倍频能量转化效率,结果如

图2所示。随着基频脉冲能量的增加,倍频转化效率先增大后减小,并且基频脉冲能量约为150 mJ时倍频转化效率达44%。当基频脉冲能量较低时,激光强度也较低,由于倍频是二阶非线性过程,故倍频转化效率相应也偏低。随着基频脉冲能量的增加,转化效率增加,与此同时,越来越多的基频光被消耗,基频泵浦源的减少必然抑制倍频成分的继续增加,甚至引起倍频光又转变为基频光<sup>[9]</sup>。另外,极高的基频脉冲强度可能导致三阶非线性效应所引起的自相位调制出现。衡量三阶非线性效应强弱的参量为非线性相互作用长度  $L_{NL}$ 。

$$L_{NL} = \frac{c}{n_2 \omega I} \quad (1)$$

其中,  $c$  为真空中的光速,  $\omega$  为基频激光中心频率,  $n_2$  为非线性折射率,  $I$  为输入的光强。  $L_{NL}$  的定义为由于自相

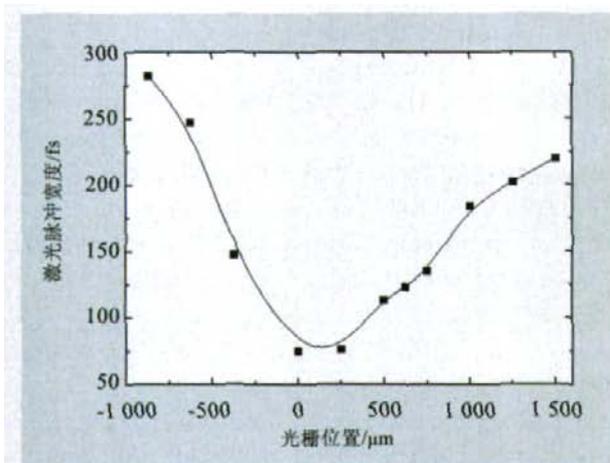


图1 压缩光栅相对位置与主激光脉冲宽度的依赖关系  
Fig. 1 Duration of fundamental laser pulses as a function of grating position

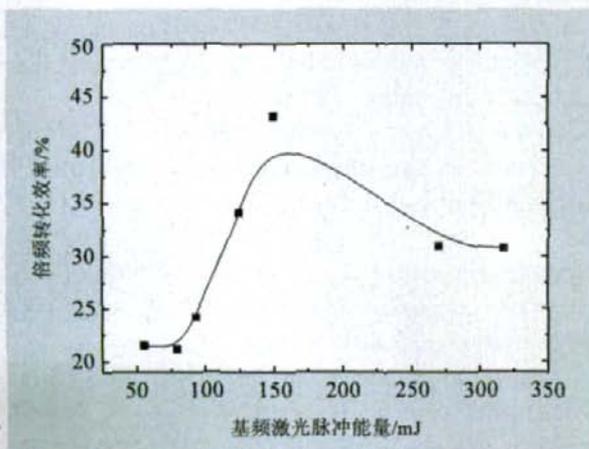


图2 倍频能量转化效率与基频激光脉冲能量的依赖关系  
Fig. 2 Efficiency of frequency doubling as a function of fundamental laser energy

位调制作用使脉冲频谱展宽为原来  $\sqrt{2}$  倍时脉冲在介质中所经过的距离。实验中,  $L_{NL} \approx 1 \text{ mm} < 2 \text{ mm}$ , 因此在本文的实验中三阶非线性效应不可忽略。SPM 效应将使基频脉冲光谱成分改变, 引发频率啁啾, 并可能会引起相位失配, 从而在基频脉冲能量较高时进一步降低倍频转化效率。

图3所示为基频脉冲能量固定 200 mJ 时, 倍频脉冲能量与基频脉冲啁啾之间的依赖关系。光栅相对位置增加 (减少) 表示压缩室中两光栅对的间距增加 (减少); 光栅相对位置小于零时, 表示光栅对的间距小于零啁啾时的值, 且脉冲为正啁啾; 光栅相对位置大于零则对应负啁啾。由图3可知, 零啁啾时倍频脉冲的能量最大, 约为 90 mJ。随着光栅相对位置偏离零啁啾, 倍频脉冲的能量减小。这主要是由于光栅相对位置偏离零点时, 脉冲啁啾量的增加导致脉宽随之增加, 基频激光强度迅速减小, 从而引起倍频效率相应降低。还可以发现, 对于绝对值相同的光栅相对位置, 基频脉冲为正啁啾时产生的倍频脉冲能量大于负啁啾。当光栅相对位置绝对值 600  $\mu\text{m}$  时, 正啁啾对应的倍频脉冲能量约为负啁啾时的 1.5 倍。对于高斯型脉冲包络, GVD 的影响可由色散长度  $L_D$  来衡量。

$$L_D = \frac{\tau_1^2}{4 \ln 2 \partial^2 k / \partial \omega^2} \quad (2)$$

$L_D$  定义为由于 GVD 效应, 脉宽变为原来的  $\sqrt{2}$  倍时脉冲在介质中所经过的距离。在本文实验中  $L_D \approx 10 \text{ mm} \gg 2 \text{ mm}$ , 因此 GVD 引起的脉宽展宽较小, 可以忽略。衡量 GVM 效应的参量为<sup>[9]</sup>:

对于 Sech 包络

$$L_r = \frac{0.36}{\Delta f_{B1} |1/v_{g2} - 1/v_{g1}|} \quad (3)$$

对于高斯包络

$$L_r = \frac{0.54}{\Delta f_{B1} |1/v_{g2} - 1/v_{g1}|} \quad (4)$$

其中,  $\Delta f_{B1}$  为脉冲光谱宽度,  $v_{g1}$ ,  $v_{g2}$  分别为基频与倍频脉冲的群速度。  $L_r$  定义为由于 GVM 效应, 使得倍频脉宽变得与基频脉宽大致相等时脉冲在介质中所经过的距离。当晶体长度大于此长度时, GVM 所引起的脉宽展宽不可忽略。在本文实验中,  $L_r$  约为 750  $\mu\text{m} < 2 \text{ mm}$ , 所以 GVM 对脉宽的展宽作用不可忽略。对于正啁啾的基频脉冲, 脉冲前沿频率低, 后沿频率高。又由于 KDP 为正常色散晶体 ( $dn/d\omega > 0$ , 其中  $n$  为晶体的折射率,  $\omega$  为光波的频率), 因此倍频光脉冲前沿群速度较快, 基频光脉冲后沿群速度较慢。这一特性可能有利于基频脉冲与倍频脉冲的重合, 从而抑制 GVM 效应, 增强倍频转化效率。

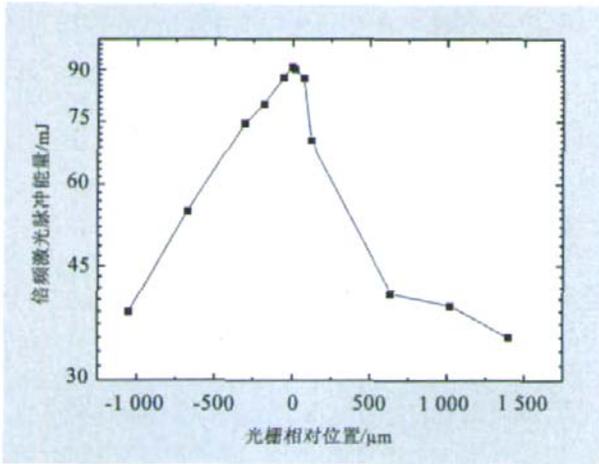


图3 倍频脉冲能量与光栅位置的依赖关系

Fig. 3 Second harmonic pulse energy as a function of grating position

图4所示为光栅在几个不同相对位置时的倍频脉冲光谱。由图可见,正啁啾时光谱展宽比负啁啾时大。这可能是由于正啁啾与SPM相结合的结果。如前面所述,在实验中,激光强度很强以至于三阶非线性效应不能忽略。色散效应将使正啁啾脉冲在时域上进一步展宽,SPM效应则使激光脉冲在频域加宽。另外还可观察到,对于正啁啾脉冲,随着啁啾量的增加,光谱成分也发生扩展。

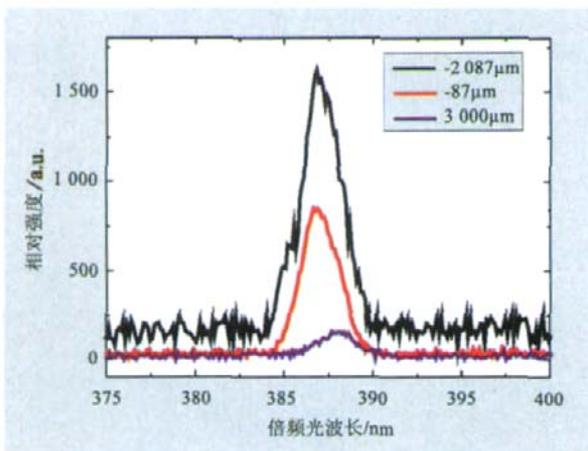


图4 不同光栅相对位置下的倍频激光脉冲光谱

Fig. 4 Spectra of second harmonic for different grating positions

### 3 结论

综上所述,本文利用中国科学院物理研究所的极光二号(XL-II)掺钛蓝宝石超短超强激光装置,使用2 mm KDP晶体对脉宽为75 fs、平均强度约 $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>

的超短超强激光脉冲进行了飞秒激光脉冲倍频的实验。通过调节基频脉冲能量能够产生高于40%的倍频转化效率。测量了倍频脉冲能量与啁啾的依赖关系,发现零啁啾对应最高的转化效率,且转化效率随啁啾量的增加而减少。还观察到在一定范围内正啁啾的基频脉冲产生的倍频脉冲能量更高(可达1.5倍)。研究不同激光参数下倍频光脉冲的特性能够加深人们对超短超强激光脉冲倍频的物理过程的认识,通过调节基频脉冲的能量以及尽量减少频率啁啾可以优化飞秒激光脉冲倍频的转化效率。

### 参考文献(References)

- [1] TABAK M, HAMMER J, GLINSKY M E, et al. Ignition and high gain with ultrapowerful lasers[J]. *Physics of Plasmas*, 1994, 1(5): 1626- 1634.
- [2] GUO T, SPIELMANN C H, WALKER B C, et al. Generation of hard x rays by ultrafast terawatt lasers [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2001, 72: 41- 47.
- [3] CHIEN C Y, KORN G, COE J S, et al. Highly efficient second - harmonic generation of ultraintense Nd: glass laser pulses[J]. *Optics Letters*, 1995, 20: 353- 355.
- [4] KRYLOV V, REBANE A, KALINTSEV A G, et al. Second - harmonic generation of amplified femtosecond Ti: Sapphire laser pulses [J]. *Optics Letters*, 1995, 20: 198- 200.
- [5] TAMAKI Y, OBARA M, MIDORIKAWA K. Second - harmonic generation from intense, 100 - fs Ti: Sapphire laser pulses in potassium dihydrogen phosphate, cesium lithium borate and - barium metaborate [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1998, 37 : 4801- 4805.
- [6] QUENEUILLE J, DRUON F, MAKSIMCHUK A, et al. Second - harmonic generation and wave - front correction of a terawatt laser system [J]. *Optics Letters*, 2000, 25: 508- 510.
- [7] ZHANG J, LI Y T, SHENG Z M. Generation and propagation of hot electrons in laser- plasmas[J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2005, 80: 957- 971.
- [8] AOYAMA M, HARIMOTOMA T J, et al. Second - harmonic generation of ultra - high intensity femtosecond pulses with a KDP crystal[J]. *Optics Express*, 2001, 9 (11): 579- 585.
- [9] ZHANG J Y, HUANG J Y, WANG H, et al. Second - harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals [J]. *Journal of Optical Society of America B*, 1998, 15: 200- 209.

(责任编辑 齐志红)