

单块非线性晶体的高次谐波产生及超宽带超连续激光光源

李志远[†] 陈宝琴

(中国科学院物理研究所 光物理重点实验室 北京 100190)

2015-10-20收到

[†] email: lizy@iphy.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20160308

1960年,美国物理学家梅曼制成的第一台红宝石激光器的问世,使激光的高相干性、高亮度等优点引起了科学界的高度重视。激光是20世纪以来,继原子能、计算机、半导体之后,人类的又一重大发明。它的出现深化了人们对光的认识,扩展了光的应用范围,形成了对传统光源的技术革命。如今,激光在社会生活、工业生产、信息和通讯、医疗卫生和国防军事的各个领域都有巨大而广泛的应用及价值,如激光加工、探测、遥感、成像、眼科手术、红外夜视成像、激光武器、受控核聚变等。

在过去几十年中,激光技术获得了巨大的发展。然而,由于激光波长是由增益物质中原子、分子或者离子的能级结构决定的,因此激光器不能产生任意波长的输出。不断拓宽激光输出的频率范围和提高转换效率,是激光技术发展的趋势。非线性频率转换技术能将一个“品质优良”的激光器的某一个固定波长的激光输出,通过非线性晶体材料转换到很难或根本不可能直接得到的波长区间,因此,它是获得新波长相干光源的重要手段^[1, 2]。激光技术和非线性光学技术相辅相成,不断地推动着激光技术的发展及其在民用和军事领域的应用。

非线性频率转换不仅要求能量守恒,还要求动量守恒,即相位匹配。在相位匹配的条件下,非线性过程可以获得最大转换效率。传统的双折射相位匹配技术限制了晶体可使用的最大非线性系数与波段范围。准相位匹配作为一种改良的技术,通过对非线性晶体的二阶非线性极化率进行空间调制,大大增加了二阶非线性过程的灵活性和可控性,以崭新的思想方法开启了非线性频率转换技术革命性的新阶段^[3-7]。

超连续光源为飞速发展的激光技术注入了新鲜的血液,带来了新的活力。当前工业领域、科研领域都在考虑用超连续激光光源替代传统的白光光源,以推动科学研究和技术的各领域取得新的进展。相比于普通的白光光源,超连续激光光源具有亮度高、功率高、频率范围广等优点。如果与超短脉冲激光(飞秒激光)技术结合,将进一步大大地提高超连续激光光源的峰值功率,从而产生集超高亮度、超高峰值功率、超宽频率范围等优点的激光光源,这必将在科学、工业和军事等广泛领域产生重要的新应用,填补过去由于技术局限性而产生的空白地带。

国际上产生超连续激光光源的主要技术主要有两类。其中一类是利用光学参量振荡技术(一种常用的非线性光学频率转化技术)^[2],即利用非线性晶体(双折射相位匹配或者准相位匹配)和强泵浦激光相互作用,在微弱的背景闲频光的辅助下,产生频率连续可调的信号激光输出。另外一类技术是利用超长的光子晶体光纤(2 m左右)和高功率的超短脉冲(ps和fs,功率>1W)激光的非线性相互作用,利用自相位调制、四波混频等三阶非线性光学效应,极大地拓宽泵浦激光的频率范围^[8]。以上两类超连续激光光源技术都利用了二阶或者三阶的非线性光学效应,存在着一些弱点,比如泵浦激光向信号激光的能量转换效率不高,光谱展宽的范围不够大,激光相干性受到削弱,光源的峰值功率不够高等。为克服这些缺点,进一步提升超连续激光光源的性能,并扩大其应用领域,有必要考虑别的更加优异的崭新技术方案。

经过激光科学和非线性光学学术界多年的探索,利用单块非线性晶体产生二次和三次谐波已经成为一个常规的简单的事情了^[1-10]。但是,实

现宽带超连续的二次谐波和三次谐波同时产生仍然是一个挑战，更不用说多阶的高次谐波同时产生了。2013年，我们课题组成功地利用啁啾超晶格结构的铌酸锂非线性晶体解决了这个科学问题^[11]。

铌酸锂作为一种铁电晶体，广泛地应用于非线性光学频率转换。通过外加高压电脉冲的方法，能使晶体内的电偶极矩发生反转，进而使晶体的二阶非线性系数发生符号的改变。辅助以各种图案的电极，可制备出周期、准周期、非周期等非线性超晶格结构材料。课题组沿光传播的方向，将铌酸锂极化负畴

的宽度选为固定值，通过改变极化正畴的宽度来改变非线性极化的周期，实现了啁啾结构的周期性极化铌酸锂晶体(图1(a))。理论分析表明，对于某个特定波长的基频泵浦光，该啁啾结构总存在一段区域使得基频波和倍频波满足准相位匹配，且不同的波长对应于不同的区域，因此该结构能够满足宽带的准相位匹配条件。课题组在室温下用外加脉冲强电场极化的方法制备了啁啾结构周期性极化铌酸锂晶体(图1(a))，通过对畴结构进行傅里叶变换，得到了样品的倒格矢分布，联合倍频过程及和频过程的色散曲线进行分析，结果表明该啁啾结构具有四个有效非线性系数较大、具有一定宽度的倒格矢带，分别对应于中心波长的一阶、二阶、三阶和四阶准相位匹配过程。更为重要的是，该啁啾结构不仅能提供二次谐波准相位匹配过程所需的倒格矢，也能对和频过程的相位失配进行补偿。利用一阶准相位匹配的倍频过程以及三阶准相位匹配的和频过程，在同一非线性超晶格结构中可同时实现宽带的二次谐波和三次谐波产生。课题组用光学参量振荡器产生的纳秒激光进行倍频实验，实现了高转换效率的宽带二次谐波(带宽100 nm，转换效率>30%)和三次谐波(带宽75 nm，转换效率>2%)的同时输出(图1(b)—(c))。由于该单块非线性晶体可实现三基色——红、绿、蓝的同时产生，它们展

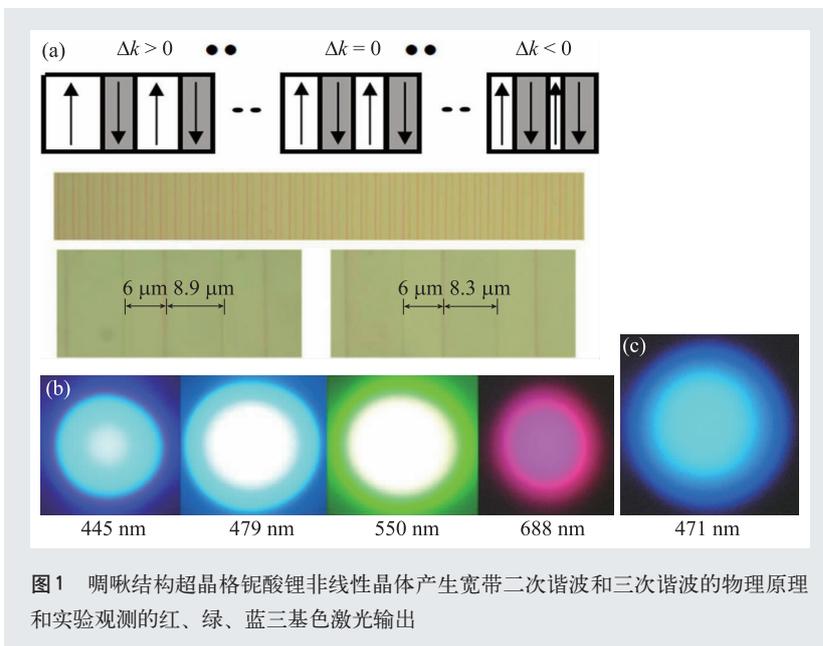


图1 啁啾结构超晶格铌酸锂非线性晶体产生宽带二次谐波和三次谐波的物理原理和实验观测的红、绿、蓝三基色激光输出

现了在大屏幕激光显示方面的巨大潜力。可以预计，如果采用更高峰值功率的飞秒脉冲激光泵浦该样品的话，非线性频率转化效率将会大大提高。相关的理论和实验工作于2014年发表在光学权威杂志*Light: Science & Applications*上^[11]。

利用单块非线性晶体同时产生二次谐波和三次谐波不是很困难，学术界有过很多成功的案例。然而，要在单块非线性晶体中实现更高次谐波的产生却一直是一个难以攻克的关卡，这是由于在高次谐波实现的过程中涉及的非线性上转换过程很多，而单块晶体所能提供的倒格矢很难同时对这些过程中的相位失配进行补偿。在世界范围内，为了实现高转换效率的高次谐波产生，只能利用多块非线性晶体级联使用，同时需要精细地控制每块晶体的相位匹配条件，以获得尽可能高的转换效率^[12-15]。利用这样的常规的实验技术方案获得高次谐波，需要的实验设备和装置体积巨大，不利于进一步的小型化和微型化。自非线性光学诞生50年以来，还没有在单块晶体中实现高效的高次谐波产生^[2]。

2014年，我们课题组利用原创性的科学思路和技术方案，在这一重要的科学难题上获得了突破性的研究进展^[16]。在2013年研究工作的基础上，结合光子能带理论和准相位匹配分析，利用啁啾结构非线性光子晶体具有宽带倒格矢分布的特点，并利用

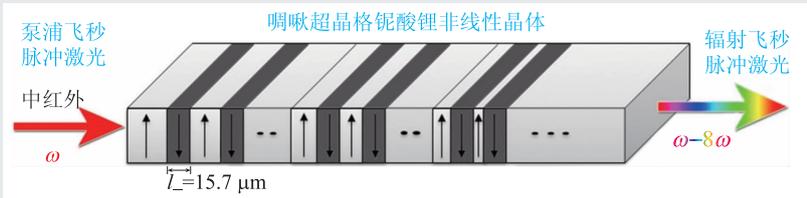


图2 单块啁啾超晶格非线性晶体和中红外飞秒脉冲激光相互作用产生超宽带的飞秒脉冲激光的示意图

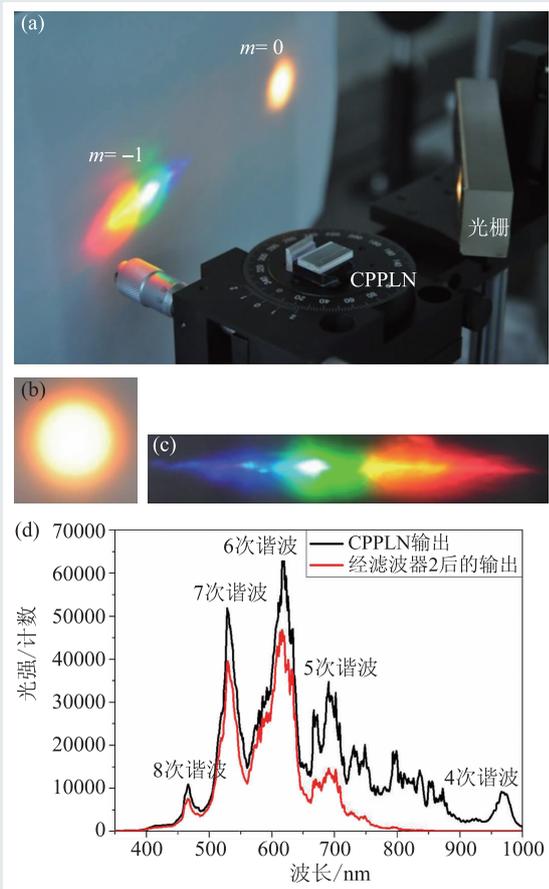


图3 啁啾结构非线性晶体中产生高次谐波的实验测量结果和光谱结构 (a)使用光栅对高次谐波输出光进行分光的照片;(b)0阶衍射光斑;(c)-1阶衍射光斑;(d)在可见光波段和近红外波段测量的高次谐波输出的光谱结构

单块准相位匹配非线性晶体和中红外超宽带飞秒脉冲激光相互作用,产生一系列多阶次的高次谐波脉冲激光(从二次谐波直至八次谐波),如图1所示。泵浦飞秒脉冲激光经过非线性晶体后,信号光涵盖了1—8次谐波的飞秒激光脉冲,其频率从4 μm 的中红外波段一直延伸到350 nm的近紫外波段。

课题组在沿光传播的方向,将负畴的宽度选为固定值,通过改变正畴的宽度来改变极化的周

期,实现了啁啾结构的周期性极化钽酸锂晶体(图2),并利用高压脉冲极化技术制备了1.6 cm长的实验样品。通过对啁啾结构中畴分布的位置函数进行傅里叶变换得到结构的倒格矢分布情况,理论分析表明,该具有啁啾结构的晶体具有多个宽带的倒格矢带分布,

不仅能对高次谐波产生过程中各非线性过程的相位失配进行补偿,还能使入射中红外飞秒脉冲泵浦激光(基频光)的各波长成分都能参与到高次谐波产生的非线性过程当中,从而充分利用激光线宽内的各成分能量,显著提高非线性相互作用的强度,产生高亮度的高次谐波。

在理论研究和实验样品成功设计和制备的基础上,课题组用中红外飞秒脉冲激光器进行实验,当中红外的飞秒激光(脉冲宽度115 fs,平均功率20 mW,带宽3400—3800 nm,重复频率1 kHz,峰值功率0.17 GW)进入啁啾结构的样品后,在输出端看到了一个非常亮的白光光斑,用光栅对输出光进行分光得到了0阶和-1阶的衍射光斑(图3),充分反映了从啁啾结构样品输出的光具有超连续宽带的可见光分布。经过仔细分析和计算,得到晶体内部的转换效率约为18%(可见光波段400—800 nm),远高于用强激光轰击原子气体和等离子体获得高次谐波的转换效率。其中,各阶谐波的转换效率分别为:四次谐波(850—950 nm)~0.7%,五次谐波(660—850 nm)~4.5%,六次谐波(560—660 nm)~7.2%,七次谐波(485—560 nm)~5.1%,八次谐波(350—485 nm)~1.2%。实验结果表明,经过特殊的设计,高阶谐波(8次谐波)的转换效率可远高于低阶谐波(4次谐波)。

啁啾结构非线性超晶格样品的设计及其成功有多方面的要素:(1)非线性过程利用了钽酸锂晶体最大的非线性系数 d_{33} ;(2)样品提供了一系列的倒格矢带,基本满足级联过程产生多阶高次谐波的要求;(3)倒格矢带有足够的带宽,可覆盖泵浦飞秒激光的带宽,从而最大限度地利用基频光所有频谱成分的能量;(4)泵浦光为飞秒脉冲激光,有高的峰值功率水平,可显著提升非线性相互作用

用强度；(5)样品为一维的非线性超晶格，各准相位匹配过程均为共线发生。共线的非线性过程有效精简了光路调整的复杂度，并且避免了走离效应等缺陷，增加了非线性作用长度，进一步增加了高次谐波的转换效率；(6)所有的非线性过程都在单块晶体内部发生，避免了使用多块级联晶体带来的晶体界面耦合损耗的问题。正是具备了如此之多的优点，才使得在单块非线性晶体中实现高效宽带的高次谐波产生，从而在非线性光学的核心战略问题上获得突破性进展成为可能。

基于啁啾调制的非线性超晶格产生高次谐波的设计方法灵活简单，适用性广，可应用于短波光源、白光光源、超连续光源、光频率梳、超短脉冲激光等高新技术，在照明、信息处理、信号探测、激光加工、光谱分析、微纳光学集成等领域有重要的实际应用价值。在基础科学上，此项成果也为进一步探索固体材料内部光和物质非线性相互作用的丰富多彩的未知前沿领域打开了一扇崭新的窗口，并提供了崭新的研究思路和研究方法。相关的理论和实验工作发表在2015年8月的物理学权威期刊 *Physical Review Letters* 上^[16]。

单块高次谐波产生非线性晶体的发明，将极大地简化传统利用非线性光学技术产生高性能激光技术的技术方案，使得常规的笨重的实验装置可以集成到一块小小的非线性晶体(2 cm*1 cm*0.05 cm)上。毫无疑问，这是非线性光学和激光技术发展历史上一个值得称道和纪念的事件。利用单块非线性晶体和泵浦飞秒脉冲激光相

互作用，产生的激光辐射将包含多阶次、不同波段、宽带的飞秒激光脉冲串。比如在上面的实验中，从非线性晶体辐射出来的激光其频率宽带从4000 nm的中红外波段一直延伸到350 nm的近紫外波段，而且在1100 nm—350 nm的近红外—可见—近紫外波段的宽广频率波段激光光谱连成一片，产生了无与伦比的超连续激光光源。另外，泵浦激光为100 fs的脉冲激光，产生的多阶谐波也都为100 fs量级的飞秒脉冲激光。更为重要的是，这些脉冲激光都同步运转，保持了很好的时间相干性，因此，一块非线性晶体在功能上相当于8台同步运转的工作在不同波段(中红外到紫外)的飞秒脉冲激光器的组合，这为开拓利用光学相干合成的概念和技术，产生亚飞秒甚至阿秒可见光脉冲激光开辟了一个崭新的天地。

啁啾结构的铌酸锂非线性超晶格晶体采用了原创性的物理原理和技术方案，可提供多波段、宽频带、多阶次的高次谐波产生所必需的准相位匹配条件，从而单块非线性晶体可产生一系列的高次谐波脉冲激光(从二次谐波直至八次谐波)。该技术集合了超高亮度、超高峰值功率、超宽频率范围等优点，是激光技术的一个重要发明和创新，有望在科学、工业和军事等广泛领域诞生新的应用，并填补过去受技术局限性而产生的应用空白地带。另外，其总体性能的提升，包括转换效率、总功率以及体积和重量均可通过现有的非线性光学和激光技术方案予以解决和实现，以更好地满足不同的实际应用的需求。

参考文献

- [1] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J *et al.* Phys. Rev., 1962, 127:1918
- [2] Shen Y R. The Principles of Nonlinear Optics. New York: Wiley, 1984
- [3] Fejer M M, Magel G A, Jundt D H *et al.* IEEE J. Quant. Electron., 1992, 28: 2631
- [4] Arie A, Vloch N. Laser & Photon. Rev., 2010, 4: 355
- [5] Zhu S N, Zhu Y Y, Qin Y Q *et al.* Phys. Rev. Lett., 1997, 78: 2752
- [6] Ren M L, Ma D L, Li Z Y. Opt. Lett., 2011, 36: 3696
- [7] Chen B Q, Zhang C, Liu R J *et al.* Appl. Phys. Lett., 2014, 105: 151106
- [8] Russell P St J, Hölzer P, Chang W *et al.* Nat. Photon., 2014, 8: 278
- [9] Zhu S N, Zhu Y Y, Ming N B. Science, 1997, 278: 843
- [10] Miyata K, Petrov V, Noack F. Opt. Lett., 2011, 36: 3627
- [11] Chen B Q, Ren M L, Liu R J *et al.* Light: Sci. & Appl., 2014, 3: e189
- [12] Pfister O, Wells J S, Hollberg L *et al.* Opt. Lett., 1997, 22: 1211
- [13] Yap Y K, Inagaki M, Nakajima S *et al.* Opt. Lett., 1996, 21: 1348
- [14] Zhang X, Wang Z, Wang G *et al.* Opt. Lett., 2009, 34: 1342
- [15] Zhang X, Wang L, Wang X *et al.* Opt. Commun., 2012, 285: 4519
- [16] Chen B Q, Zhang C, Hu C Y *et al.* Phys. Rev. Lett., 2015, 115: 083902