



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

全固态锁模激光及其同步泵浦的飞秒
脉冲产生与应用研究

作者姓名: 孟祥昊

指导教师: 魏志义研究员

学位类别: 理学博士

学科专业: 光学

培养单位: 中国科学院物理研究所

2018年6月

Generation and Application of Tunable Femtosecond Laser Pulse
Synchronously Pumped by All Solid State Mode-Locking Laser

A dissertation submitted to
University of Chinese Academy of Sciences
in partial fulfillment of the requirement

for the degree of
Doctor of Philosophy

in Optics

By

[Meng Xianghao]

Supervisor: Professor Wei Zhiyi

Institute of Physics
Chinese Academy of Sciences

June 2018

中国科学院大学
研究生学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作所取得的成果。尽我所知，除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的研究成果。对论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人和集体，均已在文中以明确方式标明或致谢。

作者签名：

日 期：

中国科学院大学
学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院有关保存和使用学位论文的规定，即中国科学院有权保留送交学位论文的副本，允许该论文被查阅，可以按照学术研究公开原则和保护知识产权的原则公布该论文的全部或部分内容，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名：

日 期：

导师签名：

日 期：

摘 要

高功率、高重频、宽带可调谐的超短脉冲激光在时间分辨光谱学、生物显微成像、THz 产生、激光通信等领域有着广泛的应用。以掺 Yb^{3+} 块状材料的全固态飞秒激光器作为泵浦源, 结合非线性频率变换技术, 可以突破增益介质荧光发射谱的限制, 将输出波长进行拓展。光学参量振荡器 (OPO) 可以实现输出波长的宽带可调谐, 将波长覆盖到紫外、可见光以及中红外波段。因此, 使用全固态飞秒激光器泵浦的光学参量振荡器结合腔内或者腔外倍频、混频是获得高功率宽带可调谐的飞秒光源的一种重要技术途径。本文重点开展了基于全固态振荡器泵浦的高功率飞秒光学参量振荡器以及激光二极管泵浦的高功率全固态飞秒振荡器的实验研究, 同时对宽带可调谐的飞秒光学参量振荡器在生物显微成像方面的应用进行了实验研究。论文的具体内容包括:

1. 基于三波混频的耦合波方程组, 对飞秒光学参量振荡器中的动力学过程进行了模拟, 从理论上分析了群速度失配、群速度色散、晶体长度等因素对参量转换效率和输出激光脉冲宽度的影响。基于商用的 Yb:KGW 全固态振荡器作为泵浦源, 结合 KTA 与 KTP 晶体, 最终实现了高功率宽带可调谐的近红外-中红外飞秒激光输出。其中信号光波长调谐范围在 $1.41\text{-}1.71\ \mu\text{m}$, 对应的闲频光在 $2.61\text{-}3.84\ \mu\text{m}$, 信号光最高平均功率为 $2.32\ \text{W}$, 闲频光为 $1.31\ \text{W}$, 整体转换效率为 51.8% 。采用啁啾镜进行腔内色散补偿, 获得的信号光最短脉冲宽度为 $129\ \text{fs}$, 接近傅里叶极限变换脉宽。

2. 以商用 Yb:KGW 全固态振荡器作为泵浦源, 利用 LBO 作为倍频晶体, 首先研究了倍频激光输出特性。其次, 利用倍频后的 $515\ \text{nm}$ 飞秒绿光作为泵浦源, 结合 BIBO 晶体, 分别在重复频率 $75.5\ \text{MHz}$ 、 $151\ \text{MHz}$ 和 $755\ \text{MHz}$ 条件下, 研究了其激光输出特性。在重复频率 $75.5\ \text{MHz}$ 的条件下, 实现了高功率可调谐的可见光-近红外波段的飞秒激光输出, 其中信号光光谱调谐范围在 $693\text{-}1000\ \text{nm}$, 对应的闲频光在 $1061\text{-}2005\ \text{nm}$ 。利用这一可调谐光源, 结合 BBO 晶体, 进行了腔外倍频实验, 最终得到了 $350\text{-}488\ \text{nm}$ 的可调谐紫外飞秒激光输出。

3. 研究了飞秒 BIBO-OPO 信号光双波长输出特性, 对信号光双波长的产生进行了理论分析, 通过实验发现双波长的产生并不完全取决于腔内的净零色散, 当泵浦光的峰值功率较高时, 合理的平衡信号光和泵浦光之间的相位匹配与群速度失配条件尤为重要, 最终在重复频率 151 MHz 的条件下, 获得了 700-1000 nm 的可调谐信号光双波长输出。

4. 开展了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 激光器的锁模实验研究, 从理论上解释了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 的锁模机制, 在锁模过程中, 除了要考虑自相位调制作用外, 飞秒泵浦光与 Ti:sapphire 激光之间的互相位调制作用更为重要, Ti:sapphire 激光实现锁模主要是利用泵浦光和锁模激光相互叠加引起的非线性耦合效应。通过实验最终实现了高重频自启动的 Ti:sapphire 锁模飞秒激光输出, 激光重复频率在 151 MHz, 为泵浦源的 2 倍。在使用啁啾镜和尖劈对进行腔内色散补偿的条件下, 最终得到的锁模激光脉冲宽度为 12.7 fs, 平均输出功率 256 mW。

5. 开展了 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体高功率被动锁模实验研究, 通过理论计算模拟了谐振腔的结构以及腔内各元器件引入的色散, 采用半导体激光器作为泵浦源, 基于 Yb:KGW 晶体, 在 28.4 W 的泵浦光功率下, 实现了平均功率 7.6 W, 单脉冲能量 97 nJ, 峰值功率 0.606 MW 的高功率锁模飞秒激光输出。而采用 Yb:CGA 作为增益介质, 最终获得了平均功率 10.3 W, 单脉冲能量 127 nJ 的高功率锁模皮秒激光输出。

6. 开展了宽带可调谐飞秒 OPO 生物显微成像实验研究, 首先对自主研发的飞秒 OPO 光源进行了工程化设计, 接下来利用可调谐的飞秒 OPO 作为驱动源, 与中国科学院医工所合作, 成功进行了双光子显微成像实验研究, 获得了比较好的实验结果。这种自主研发的宽带可调谐的飞秒 OPO 光源为双光子显微成像技术提供了强有力的驱动源, 为后续的产业化发展奠定了基础。

关键词: 飞秒激光, 非线性频率变换, 光学参量振荡器, 同步泵浦, 全固态激光器

Abstract

High power, high repetition rate, widely tunable ultrafast lasers are applied in various fields of time-resolved spectroscopy, biological microscopy imaging, terahertz-wave (THz) generation and laser communication. Nonlinear optical frequency conversion technologies based on a Yb^{3+} bulk material femtosecond laser system can generate new laser wavelength, which can not be produced directly from the traditional laser sources. Optical parametric oscillators (OPOs) is a continuously tunable wavelength laser source, whose wavelength covers from ultraviolet to mid-infrared. It is a feasible method that using all solid-state laser sources to pump OPO with intracavity or extracavity sum-frequency to generate high power widely tunable femtosecond pulse. This thesis focuses on the experimental research of femtosecond OPO pumped by all solid-state laser and high power directly pumped by laser diodes (LD). In addition, we also study the two-photon fluorescence microscopy in biological microscopy imaging based on home-made widely tunable femtosecond OPO source. The main research works in this thesis are summarized as follows:

1. We have simulated the dynamic process of femtosecond OPOs based on the three-wave interaction equation. We have studied the factors which effects on the frequency conversion efficiency and pulse duration of the output pulse, such as group velocity mismatch, group velocity dispersion and crystal length. Based on a commercial Yb:KGW all solid-state femtosecond laser source, we have generated high power widely tunable near-infrared to mid-infrared femtosecond pulse combined with KTA and KTP crystal. The signal wavelength is covered from 1.41-1.71 μm , the corresponding idler wavelength is from 2.61-3.84 μm . The OPO generates as much as 2.32 W of signal power and 1.31 W of idler power, corresponding to a total conversion efficiency of 51.8%. By compensating intracavity dispersion, the signal pulse has a nearly Fourier transform-limited duration of 129 fs at 1.52 μm .

2. With a LBO crystal, the characteristics of second harmonic pulse from Yb:KGW laser source is studied. Based on this 515 nm femtosecond pump source and BIBO crystal, we have studied the properties of output pulse at different repetition rate of 75.5 MHz, 151 MHz and 755 MHz. Operating at 75.5 MHz, the signal can be tuned from 693-1000 nm, the corresponding idler is covered from 1061-2005 nm. Ultraviolet

femtosecond pulses from 350-488 nm has been obtained by extracavity second harmonic generation (SHG) in the OPO.

3. A high-repetition-rate, tunable femtosecond dual-signal-wavelength OPO based on BiBO crystal has been demonstrated. We have studied the process of the signal dual-signal-wavelength in OPO. The phase-matching condition is not quite rigor pumped by high peak power lasers. Our results shows that the net-zero dispersion, does not only determine the dual-wavelength oscillation. The balance of phase-matching condition and group velocity mismatch between dual signals and pump source is more significant for generation of dual-signal. The dual-signal-wavelength is tunable from 700 to 1000 nm at the repetition rate of 151 MHz.

4. A femtosecond laser synchronously pumped self-starting Ti:sapphire oscillator has been investigated both experimentally and theoretically. Except for self-phase modulation, it is worth noting that the high-efficiency cross-phase modulation of Ti:sapphire pulses and pump pulses spread together with high third-order nonlinearity in the crystal can generate efficient temporal absorption even if there exists negative dispersion in the cavity. Wavelength shifts of the pulses induced by cross-phase modulation combine with the wavelength dependence of the cavity round-trip time for the efficient synchronization of the femtosecond pulse trains. The repetition rate of the Ti:sapphire laser is set to be 151 MHz, which is successfully locked to the twice that of the pump laser. Using the chirped mirrors and wedges to compensate the intracavity dispersion, the pulse duration is 12.7 fs and the output power is 256 mW.

5. The high power passively mode-locked Yb:KGW and Yb:CGA oscillators has been demonstrated. We have simulated the structure of cavity and calculated the dispersion induced by the elements in the cavity. Using the fiber-coupled LD as pump source and with 28.4 W pump power, 7.6 W mode-locked pulses are obtained from Yb:KGW oscillator, the corresponding pulse energy is 97 nJ and the peak power is 0.606 MW. We also have obtained high power picosecond mode-locked pulses from Yb:CGA oscillator. The maximum output power is 10.3 W, and the corresponding pulse energy is 127 nJ.

6. Using the home-made widely tunable femtosecond OPO as the laser source, we have studied the biological microscopy imaging. Firstly, the femtosecond OPO source has been designed and developed successfully. Then we collaborate with SIBET, CAS to study the two-photon fluorescence microscopy in biological microscopy

imaging and has obtained satisfactory results empirically. This home-made femtosecond OPO provides a powerful driving source for two-photo fluorescence biological microscopy and establishes the foundation for the subsequent industrialization.

Keywords: femtosecond laser, nonlinear frequency conversion, optical parametric oscillators, synchronously pumped, all solid-state laser

目 录

摘 要	I
Abstract	III
目 录	VII
第 1 章 绪论	1
1.1 超短脉冲激光发展历程	1
1.2 掺镜全固态超快激光研究进展	3
1.3 飞秒激光非线性频率变换技术概述	5
1.3.1 光学参量振荡器研究进展	6
1.3.2 光学参量振荡器的应用	9
1.4 论文选题意义及研究内容	11
第 2 章 非线性光学频率变换理论与全固态锁模原理	15
2.1 非线性光学频率变换理论	15
2.1.1 非线性光学基础	15
2.1.2 非线性耦合波方程组	17
2.1.3 相位匹配技术	25
2.1.4 相位匹配方法	27
2.1.4.1 角度相位匹配	28
2.2 光学参量振荡器	30
2.2.1 光参量振荡器类型	31
2.2.2 同步泵浦光学参量振荡器	33
2.2.3 非线性晶体简介	33
2.3 全固态锁模原理及技术	34
2.3.1 被动锁模原理	34
2.3.2 克尔透镜锁模原理	36
2.3.3 SESAM 锁模原理	37
2.4 色散补偿技术	39
2.4.1 啁啾镜	40
2.4.2 GTI 镜	41

2.5	本章小结	41
第 3 章	高功率紫外-中红外宽带可调谐飞秒 OPO 实验研究.....	43
3.1	高功率近红外-中红外宽带可调谐飞秒 OPO	43
3.1.1	KTP 与 KTA 晶体简介	44
3.1.2	近红外-中红外飞秒 OPO 理论模拟.....	45
3.1.3	近红外-中红外飞秒 KTA-OPO 实验研究.....	53
3.1.4	近红外-中红外飞秒 KTP-OPO 实验研究.....	59
3.2	高重频宽带可调谐飞秒 OPO	62
3.2.1	BIBO、LBO 和 BBO 晶体简介	63
3.2.2	高功率 515 nm 飞秒激光产生.....	65
3.2.3	高重频 BIBO-OPO 实验研究.....	67
3.3	双波长可见光-近红外可调谐飞秒 OPO	79
3.3.1	BIBO-OPO 信号光双波长实验研究	80
3.4	本章小结	85
第 4 章	飞秒激光同步泵浦的 Ti:sapphire 振荡器实验研究.....	87
4.1	飞秒激光同步泵浦锁模机制	88
4.2	飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 锁模激光器实验研究	90
4.3	本章小结	98
第 5 章	高平均功率掺 Yb ³⁺ 晶体全固态飞秒振荡器研究	99
5.1	Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体特性	99
5.2	高功率 Yb:KGW 被动锁模飞秒激光器实验研究	101
5.3	高功率 Yb:CGA 被动锁模皮秒激光器实验研究	111
5.4	本章小结	115
第 6 章	宽带可调谐飞秒 OPO 用于神经显微成像的研究.....	116
6.1	宽带可调谐飞秒 OPO 样机的设计与搭建	117
6.2	双光子显微成像实验	117
6.2.1	生物切片成像.....	118
6.2.2	检流计振镜成像.....	119
6.2.3	共振振镜扫描成像.....	121
6.2.4	扫描共聚焦显微镜层扫成像.....	124
6.2.5	双光子 STED 实验.....	125

6.3 本章小结	126
第 7 章 总结与展望	128
参考文献	131
个人简历及发表文章目录	145
致 谢	149

第 1 章 绪论

激光作为 20 世纪伟大发明之一，其英文名为 Laser，是 Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation 的首字母缩写，其实质是受激辐射的光放大，激光技术的出现为人类社会的进步做出了巨大贡献。自从世界上第一台激光器问世以来，激光技术已经经历了半个世纪的发展，随着基础理论的完善，高功率、高光束质量的泵浦源的发展以及大批性能优良的增益介质和非线性材料的出现，激光技术已经在科研、医疗、制造、通信和军事等领域扮演着极为重要的角色。激光器按工作性质上可以分别两种，即连续光激光器和脉冲光激光器，而对于超短脉冲激光而言，其脉冲宽度在皮秒（ps, 10^{-12} s）或者飞秒（fs, 10^{-15} s）量级，甚至阿秒（as, 10^{-18} s）量级[1]。由于其具有脉冲宽度窄，峰值功率高的特点，在生物医学成像、原子分子动力学、强场物理、激光核聚变等领域有着广泛的应用[2-5]。随着激光技术的迅速发展，高功率、短脉宽、宽带可调谐的超短脉冲激光光源成为人们追逐研究的对象。非线性光学为超短脉冲激光的研究提供了强有力的技术支持，特别是在非线性频率变换技术领域，对拓展激光光谱覆盖范围起着重要的作用。

1.1 超短脉冲激光发展历程

自从世界上第一台红宝石激光器问世以来[6]，人们就一直致力于研究脉冲宽度更短的激光光源。最初采用调 Q 锁模方式[7]，实现了脉冲宽度为纳秒（ns, 10^{-9} ）量级的激光输出，接下来的时间里，科学家们又采用其他锁模方式获得了皮秒量级的锁模激光[8]。飞秒激光的出现要追溯到 1981 年，Fork 等人在染料激光器中首次获得了 90 fs 的锁模激光脉冲[9]。随后几年，科学家们为了获得脉冲宽度更短的飞秒激光，采用了色散补偿技术将飞秒激光脉冲宽度进一步缩短。1985 年，Fork 小组在之前实验的基础上，在环形染料激光器中采用了棱镜对进行色散补偿，最终获得了 27 fs 的锁模飞秒激光脉冲[10]。两年之后，他们在腔内设计了光纤-棱镜-光栅压缩系统，进一步将锁模激光脉冲宽度压缩到 6 fs[11]，这是目前染料激光器能够获得锁模激光的最短脉冲宽度，这一记录维持了长达十年

之久。然而，染料激光器运行状态比较差，并且结构复杂，维护起来比较困难。但是，染料激光器作为第一代飞秒激光光源，是当时仅有的能够产生飞秒脉冲的激光器，在上世纪 80 年代仍然是主要的研究超快现象的工具。

在染料激光器发展的同时，科学家们也在探索其他方式来获得飞秒激光脉冲。掺钛蓝宝石（Ti:sapphire）、掺铬镁橄榄石（Cr: forsterite）等一系列性能优良的固体激光材料的出现，使飞秒激光技术进入了崭新的时代。在这些晶体材料中，Ti:sapphire 晶体以其优良的光学性质，备受人们青睐。首先，Ti:sapphire 不仅具有比较宽的吸收谱，可以支持多种光源泵浦，更重要的是，其上能级寿命长（约为 $3.2 \mu\text{s}$ ），荧光发射谱非常宽，可以覆盖 660-1200 nm，理论上支持 2.7 fs 的锁模脉冲宽度。其次，Ti:sapphire 具有高硬度、高热导率系数等优良的物化性质。Ti:sapphire 晶体的出现，给飞秒激光领域带来了突飞猛进的进展，开创了全固态超短脉冲激光领域的新纪元。1991 年，D. E. Spence 等人利用克尔透镜锁模技术，在腔内使用棱镜对补偿色散的情况下，最后获得了 60 fs 的锁模激光输出[12]，之后 Haus 等人从理论上成功解释了克尔透镜锁模现象[13]。此后的几年，Ti:sapphire 激光器的锁模脉冲宽度不断被刷新，直到 1999 年，Theo Tschudi 等人采用棱镜对和啁啾镜相结合的方式对色散进行补偿，最终获得了 5.4 fs 的超短脉冲，打破了由染料激光器保持的长达十年的最短脉冲记录[14]。2006 年，M. Yamashita 等人通过腔外压缩的方式，将脉冲宽度压缩到接近 Ti:sapphire 光学周期的 2.8 fs[15]。在色散补偿技术不断发展的同时，半导体可饱和吸收镜的出现，使人们不仅可以获得周期量级的飞秒激光脉冲，同时还可以实现锁模激光的自启动。与此同时，啁啾镜色散补偿技术的不断进步为高重复频率的 Ti:sapphire 振荡器的发展提供了契机。高重复频率的飞秒激光器在时间分辨光谱学，光学频率梳等领域有着重要的应用。1999 年，A. Bartels 等人利用 Ti:sapphire 振荡器成功获得了重复频率为 2 GHz 的飞秒激光输出[16]，脉冲宽度为 23 fs。随后 Ti:sapphire 激光器锁模脉冲重复频率不断被提升，至今已有 10 GHz 的相关报道[17]。但是，对于重复频率在 GHz 的 Ti:sapphire 激光器，其腔长尺寸限制了谐振腔内部元件的种类和数量，同时腔内的单脉冲能量比较低，这些因素不利于实现最初的克尔透镜锁模。近些年来，利用超短脉冲同步泵浦 Ti:sapphire 获得自启动的飞秒锁模激光备受人们关注。2005 年，Richard Ell 等人利用锁模 Nd:YVO₄ 激光器倍频后的皮秒绿光

作为泵浦源，在 Ti:sapphire 晶体中获得了自启动的 6 fs 的锁模激光输出[18]。2017 年，Didenko 等人利用 Yb:KGW 飞秒振荡器作为泵浦源，利用同步泵浦的方式实现了 Ti:sapphire 飞秒激光输出[19]。与常规泵浦源相比，采用超短脉冲同步泵浦 Ti:sapphire，不需要在腔内引入扰动或者使用可饱和吸收体，就可以实现自启动的锁模飞秒激光输出。对于产生高重频的飞秒激光，超短脉冲激光泵浦可以提高自启动实现方式，当重复频率在几百 MHz 到几个 GHz 范围内，采用超短脉冲激光泵浦可以克服高重频条件下的自启动模式较弱的缺点，增加了 Ti:sapphire 激光器的锁模稳定性。

在全固态超短脉冲领域，除了追求更短的脉冲宽度和更高的重复频率外，拓展激光光谱的覆盖范围也非常重要。由于不同的激光增益介质具有不同的荧光发射谱线，通过合理的选择激光增益介质，就可以获得不同波段的激光输出。上世纪 80 年代后期，随着半导体工艺水平的改进和日益成熟，采用量子阱（QW）和应变量子阱（SLQW）等结构的激光二极管得到了快速发展，为飞秒激光器实现全固化、小型化奠定了基础。半导体激光器的迅速发展使得选择合适的增益介质以获得期望的激光输出波长成为可能。

超短脉冲激光技术已经经历了将近三十年的发展历程，目前全固态飞秒激光器发展已经相当成熟，其重复频率、脉冲宽度和峰值功率等激光参数都比较优越，目前已经广泛的应用到各研究领域。

1.2 掺镱全固态超快激光研究进展

全固态飞秒激光器，通常采用高功率半导体激光器作为泵浦源，与传统的闪光灯泵浦方式相比，其优点主要包括：（1）激光转换效率高，大部分激光增益介质的吸收谱线和半导体激光器的发射谱线相重合；（2）使用寿命比较长，可靠性高；（3）激光器结构紧凑，输出功率高，波长覆盖范围广。近年来，随着半导体激光器的飞速发展和晶体生长技术的不断改进，全固态飞秒激光器受到越来越多的关注，飞秒激光技术已经进入了一个新的时代。

众所周知，在全固态飞秒激光器中，其组成三要素为泵浦源、谐振腔以及增益介质。其中增益介质处于核心地位，它的性质直接影响到了激光器的输出参数和运行状态。对于固体激光材料，一般包含掺杂基质和掺杂离子两部分。对于掺

杂基质，必须具有优良的光学性能，折射率比较均匀，同时具备良好的热力学和机械性能，以适应大能量和高功率的激光运转。其次，晶格结构必须适合掺杂有效离子，能够使这些掺杂离子表现出更为有利的激光特性，同时晶体材料能够实现大尺寸的均匀生长。而对于掺杂离子，主要包含稀土元素（ Nd^{3+} ， Yb^{3+} ， Er^{3+} ， Tm^{3+} ， Ho^{3+} 等），过渡金属元素（ Cr^{3+} ， Ti^{3+} 等）和金属元素（ Fe^{2+} 等）等。通过合理的选择掺杂基质和掺杂离子，就可以实现特定波段的激光输出，目前激光输出波长范围可以从可见光覆盖到中红外波段。在众多超快激光介质中，中心波长在 $1\ \mu\text{m}$ 附近的掺镱（ Yb^{3+} ）离子增益介质备受人们关注。随着高亮度、高功率半导体激光器的出现， Yb^{3+} 掺杂离子的固体激光材料得到迅速发展，成为高功率以及飞秒激光领域最为重要的增益介质之一。 Yb^{3+} 离子具有比较简单的能级结构，这使得 Yb^{3+} 不存在激发态吸收等减小有效发射截面的内部机制，从而有效的提高了泵浦能量利用效率，同时也不存在浓度淬灭现象，可以将晶体制做的很薄，方便热管理。最重要的是， Yb^{3+} 的吸收谱线非常适合用半导体激光器直接泵浦，其吸收波长分别在 $940\ \text{nm}$ 和 $980\ \text{nm}$ 附近，能够与高亮度、高功率的铟砷化镓（ InGaAs ）半导体泵浦源进行有效耦合，同时其荧光发射谱比较宽，可以支持百飞秒量级的超短脉冲激光输出。凭借以上优势，掺 Yb^{3+} 的增益介质已经受到人们的广泛关注，成为半导体激光器直接泵浦产生飞秒激光的首选材料之一。以掺镱钨酸钪钾（ $\text{Yb:KGd}(\text{WO}_4)_2$ ， Yb:KGW ）晶体为例，2000年，Brunner等人利用被动锁模方式首次利用 Yb:KGW 晶体实现了飞秒激光输出[20]，中心波长为 $1037\ \text{nm}$ ，脉冲宽度 $176\ \text{fs}$ 。两年后，Courjaud等人在 Yb:KGW 腔内使用 Gires-Tournois（GTI）镜进行色散补偿，最终获得了 $150\ \text{fs}$ ，平均功率 $1.2\ \text{W}$ 的飞秒激光输出[21]。2009年，Hoos等人利用半导体激光器作为泵浦源，最终实现了平均功率 $5\ \text{W}$ ，脉冲宽度 $161\ \text{fs}$ 的锁模激光运转[22]。对于全固态飞秒激光器而言，同时兼顾高功率、短脉宽的飞秒脉冲是人们不断追求的目标，因此就需要探索新型的掺 Yb^{3+} 离子的增益介质，从而得到尽可能宽的荧光发射谱线，最终获得更短的锁模激光脉冲。近年来，掺镱铝酸钪钙（ Yb:CaGdAlO_4 ， Yb:CGA ）作为一种新兴的超短脉冲激光增益介质，其不但拥有更宽更平坦的荧光发射谱线，而且具有优良的光学物化性质，在超短脉冲激光和薄片激光领域展现出良好的应用前景。2005年，Y. Zaouter等人首次在 Yb:CGA 晶体中实现了 $47\ \text{fs}$ 的锁模激光输出[23]。

2012年, HQ公司的工程师利用双端泵浦方式, 获得了平均功率12.5 W, 脉冲宽度94 fs的锁模激光输出, 是目前采用Yb块状材料飞秒振荡器直接输出得到的最高平均功率[24]。2014年, P. S é villano等人采用克尔透镜锁模方式, 在Yb:CGA晶体中成功实现了32 fs的锁模激光输出, 脉冲宽度已经接近理论极限[25]。

采用高功率半导体激光泵浦的全固态飞秒激光器具有转化效率高、结构紧凑、输出光谱范围宽等优点, 结合非线性频率变换技术可以将激光输出波长从紫外波段一直拓展到中红外, 甚至太赫兹 (THz) 波段, 这使得全固态激光技术迎来了蓬勃发展的新时代。全固态飞秒激光器作为新一代的超短脉冲光源, 是当前激光技术发展的主要方向之一, 在科研、国防、医疗、信息等领域扮演着极为重要的角色。

1.3 飞秒激光非线性频率变换技术概述

非线性光学是研究光与物质之间相互作用的本质和规律的一门新兴学科。对于参量转换过程, 虽然在这个过程中介质本身不参与能量交换, 但是光在介质中传播时会产生新的频率, 不同频率的光波之间会产生相互作用, 从而实现光学频率变换[26]。非线性频率变换主要分为两种, 即频率上转换和频率下转换。非线性频率变换技术的发展与超短脉冲激光技术发展密切相关, 尤其是飞秒激光的出现, 对非线性频率变换技术的发展起到了强有力的推动作用。

受到增益介质荧光发射谱线的限制, 到目前为止, 超短脉冲激光的输出波长一般集中在可见光-近红外波段。以Ti:sapphire晶体为例, 其发射谱覆盖范围在660-1200 nm, Ti:sapphire飞秒振荡器的输出波长可以覆盖690-1040 nm, 并在该范围内可以实现波长调谐。对于掺Yb的增益介质, 其激光输出波长往往在近红外波段, 主要集中在1030 nm和1040 nm附近。而对于掺铥 (Tm)、钬 (Ho) 的介质, 激光中心波长在2 μm 附近。尽管目前科学家们已经研制出了一系列用于超快激光的增益介质, 但是仍然不能满足人们的应用需求。利用非线性频率变换的方式可以拓展飞秒激光的输出波长范围, 获得传统激光器无法得到的相干辐射, 实现从真空紫外到远红外[27-30], 甚至THz波段的超短脉冲激光输出, 非线性频率变换技术的发展极大的拓宽了飞秒激光的应用领域, 在多光子生物成像、激光加工、泵浦探测、激光测距等领域得到了广泛的应用[31-38]。

1.3.1 光学参量振荡器研究进展

光学参量振荡器 (optical parametric oscillator, OPO) 可以用来获得波长宽带可调谐的激光脉冲[39]。近年来随着非线性晶体生长技术的蓬勃发展,一大批性能优良的非线性晶体日益成熟,同时伴随着非线性频率变换技术和可调谐激光技术的飞速前进, OPO 已经成为可调谐飞秒激光技术领域的主流,在很多重要领域中扮演着极为重要的角色。

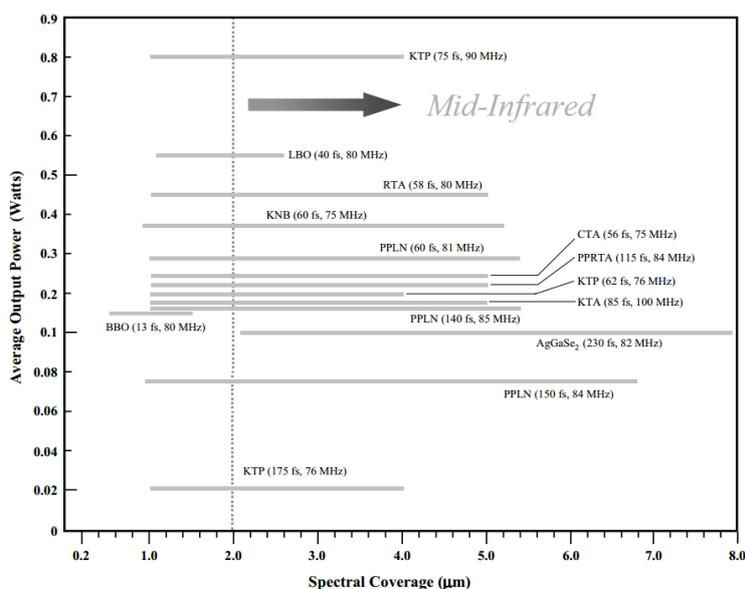


图 1.1 Ti:sapphire 激光器泵浦的飞秒 OPO 实验结果[56]

Fig. 1.1 Summary of the temporal and tuning characteristics of several optical parametric oscillators synchronously pumped by Ti:sapphire laser sources

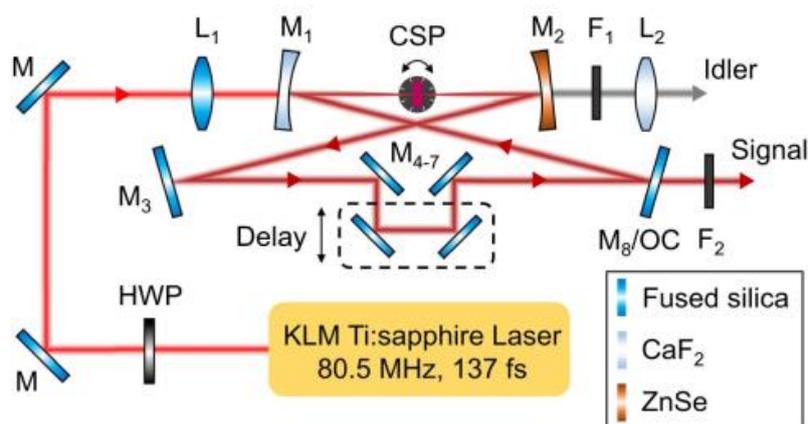


图 1.2 Ti:sapphire 激光器泵浦 CSP 产生中红外飞秒激光实验装置[67]

Fig. 1.2 Experimental setup for CSP-OPO pumped by Ti:sapphire laser sources

1962年,科学家们首次提出了OPO设计方案,同时进行了理论分析[40-43]。1965年, J. A. Giordmaine 等人首次实现了 OPO 振荡,他们利用 $\text{Nd}^{3+}:\text{CaWO}_4$ 激

光器倍频后的 529 nm 绿光作为泵浦源, 利用铌酸锂 (LiNbO_3) 晶体, 最终实现了 0.97-1.15 μm 的可调谐激光输出[44]。随后科学家们不断完善和发展光学参量理论, 探索 OPO 谐振腔结构、相位匹配和波长调谐方式, 取得了一定的进展[45-55]。1989 年, D. C. Edelstein 所在的小组利用染料激光器作为泵浦源, 结合磷酸钛氧钾 (KTA) 晶体, 首次实现了可调谐飞秒激光输出, 其中信号光波长范围在 820-920 nm, 闲频光在 1.90-2.54 μm [49]。但是, 由于染料激光器自身存在一些缺点, 使得这类飞秒 OPO 并没有得到广泛应用。Ti:sapphire 锁模激光器的出现为飞秒 OPO 的发展奠定了坚实的基础, 目前利用 Ti:sapphire 激光器作为泵浦源, 结合不同种类的非线性晶体, 已经实现了从紫外到中红外波段的宽带可调谐飞秒激光输出, 如图 1.1 所示[56]。在 OPO 可实现的众多波长之中, 处于 3-5 μm 的中红外超短脉冲激光处于大气的窗口波段, 其在大气传输过程中具有较强的穿透力, 大气中的各组成部分对该波段激光的散射比较弱。同时该波段包含了众多原子、分子的吸收峰, 因此也被称为分子指纹识别区, 可以利用这一光谱学特性, 对材料内部的分子信息进行研究[57]。因此, 中红外的超短脉冲激光在原子分子动力学、激光通信、激光测距和军事对抗等领域有着重要的应用[58-64]。目前通过 Ti:sapphire 激光器结合非线性晶体, 已经成功实现了可调谐飞秒中红外激光输出。1999 年, W. Sibbett 等人利用准相位匹配晶体-掺 5% 氧化镁的周期性极化铌酸锂 (MgO:PPLN), 成功获得了 2.8-6.8 μm 的宽带可调谐中红外飞秒激光输出[65]。2016 年, M. Ebrahim-Zadeh 所在的课题组利用级联 OPO 方式, 结合新型非线性晶体二磷化硅镉 (CdSiP_2 , CSP), 最终获得了 6-8 μm 的可调谐中红外飞秒激光脉冲[66]。两年后, 如图 1.2 所示, 该课题组在之前的基础上, 进一步优化谐振腔结构, 选择合适切割角度的 CSP 晶体, 利用 Ti:sapphire 激光器直接泵浦, 实现了 7-8 μm 可调谐中红外飞秒激光输出[67], 其中心波长在 8 μm 附近, 获得的平均功率为 7 mW。可调谐中红外激光, 由于其在光谱测量、激光遥感、激光测距等领域具有支配地位, 因此受到人们的广泛关注[68-73]。而对于中红外飞秒激光, 因为其具有较高的峰值功率, 可以用于军事对抗等国防领域, 因此发展中红外的飞秒激光成为 OPO 领域研究的热点[74-76]。

OPO 作为获得可调谐飞秒激光最为简洁有效的方法之一, 除了中红外波段有着重要的应用之外, 其紫外波段同样在诸多领域有着重要的应用价值。紫外飞

秒激光具有波长短、脉冲宽度窄、峰值功率高、分辨率高等特点，使人们对微观世界的认识上升到了一个新的高度[77-81]。紫外飞秒激光，由于其频率高出红外波段好几个数量级，使得其具有更高的时间和空间分辨率，以紫外激光作为驱动源的光谱分析仪，对解释材料物理本质，推动材料生长技术的发展有着重要的意义；在生物医学领域，紫外飞秒激光可以有效的打断有机物之间复杂的分子键，精确的切割生物组织细胞，在治疗白内障、近视、外科手术等方面具有突出的贡献；在激光加工领域，利用紫外飞秒激光可以实现对材料的“冷加工”，制备出超精细的微米甚至纳米尺寸的三维结构，同时紫外飞秒激光与物质相互作用区域仅发生在激光焦斑中心，因此能够在透明材料内部进行三维直写并获得超越衍射极限的分辨率。利用 OPO 结合非线性晶体，通过腔内或者腔外倍频、和频的方式，可以实现可调谐的紫外飞秒激光输出[82-84]。2008 年，M. Ghotbi 等人，利用 OPO 腔内倍频的方式，获得了 250-355 nm 的可调谐紫外飞秒激光脉冲，整个光谱调谐范围内的紫外激光脉冲宽度在 132-180 fs 之间[82]。

飞秒 OPO 技术目前已经比较成熟，其研究趋势主要集中在提高平均功率，缩短脉冲宽度，拓展波长调谐范围。虽然 Ti:sapphire 激光器在飞秒激光技术中具有独特的优势，但其最大输出功率一般在 3 W 左右，这在很大程度上限制了 OPO 的输出功率。近年来，随着掺 Yb 全固态振荡器和光纤放大器的迅速崛起，为飞秒 OPO 的发展提供了新的契机，就目前而言，商用的掺 Yb 块状材料的全固态飞秒振荡器输出功率已经高达 12.5 W，脉冲宽度小于 100 fs，光纤放大器的输出功率更高，可以获得几十瓦的激光脉冲，而掺 Yb 的薄片激光器平均输出功率则更大，最高可以实现百瓦量级。上述几种激光器的输出功率均已超过了 Ti:sapphire 激光器，并且成本较低，操作简单，便于维护。2011 年，Robin Hegenbarth 等人利用 Yb:KGW 飞秒振荡器作为泵浦源，结合 PPLN 晶体，最终获得了平均功率高达 1.5 W 的信号光输出，闲频光的输出功率在几百毫瓦[85]。2012 年，U. Morgne 的研究小组采用平均功率 22 W 的 Yb:KLu(WO₄)₂ 薄片激光器作为泵浦源[86]，首先通过倍频获得了平均功率 13 W 的 515 nm 飞秒绿光，利用这个飞秒绿光结合 BBO 晶体，最终实现了平均功率超过 3 W 的信号光输出，其实验装置如图 1.3 所示。

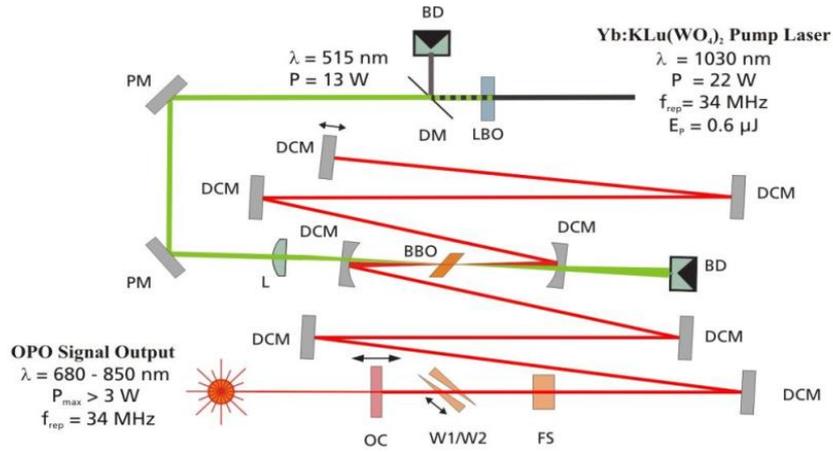


图 1.3 Yb:KLu(WO₄)₂ 薄片激光器泵浦 BBO-OPO 实验装置[86]

Fig. 1.3 Experimental setup for BBO-OPO pumped by thin disk Yb:KLu(WO₄)₂ laser

1.3.2 光学参量振荡器的应用



图 1.4 相干合成实验装置[87]

Fig. 1.4 Schematic of the experimental setup for coherent synthesis

多波长的超短脉冲激光在泵浦探测、差频产生 THz、相干合成等领域有着重要的应用。2011 年，德国马普量子所的 F. Krausz 小组将空心光纤展宽后的超连续光谱分成三个部分，分别压缩后进行相干合成，最终实现了 0.88 个光学周期的飞秒脉冲[87]。相干合成是一种可以获得亚飞秒激光脉冲的方法，其实验前提是需要飞秒激光器输出多个波长，或者将单个波长进行光谱展宽后分成多个波长。而飞秒 OPO 输出的信号光和闲频光可以称为广义的双波长，并且在 OPO 的发展过程中，人们可以观察到信号光的双波长现象。1997 年，K. C. Burr 等人采用腔内色散补偿的方式，使信号光在净零色散区域实现振荡，最终实现了信号光双波

长输出[88]。2014年,天津大学的顾澄琳等人利用LBO晶体的双折射匹配特性,基于大模场的光子晶体光纤泵浦源,获得了可见光范围内的信号光双波长输出。飞秒OPO的双波长特性成为当今激光技术领域研究的热点,其在波长调谐、脉冲宽度等方面都取得了显著的进步,具有较大的发展空间,双波长的输出机理还有待深入研究。

2005年,德国马普所科学家T. Hansch和美国国家标准技术研究所科学家J. Hall凭借在光学测量领域的杰出贡献,获得了当年的诺贝尔物理学奖。此后,飞秒光学频率梳如雨后春笋般涌现,成为超短脉冲激光领域的研究热点[89-99]。飞秒OPO可以实现激光输出波长的宽带可调谐,通过选择合适的泵浦源和非线性晶体,可以实现普通的激光器无法获得的中红外波段激光输出,因此发展中红外波段的飞秒光学频率梳备受人们关注。2009年,lorian Adle等人利用掺Yb的光纤激光器作为泵浦源,对飞秒OPO产生的超连续谱载波包络相位(CEP)进行锁定,最终实现了0.4-2.4 μm 的复合光梳[97]。两年后,K. L. Vodopyanov所在的研究小组利用掺 Er^{3+} 光纤放大器,结合PPLN晶体,获得了2.5-3.8 μm 中红外飞秒激光输出,如图1.5所示[100]。2012年,该课题组在之前的研究基础上,利用砷化镓(GaAs)晶体,成功获得了2.6-6.1 μm 的中红外光梳[101]。

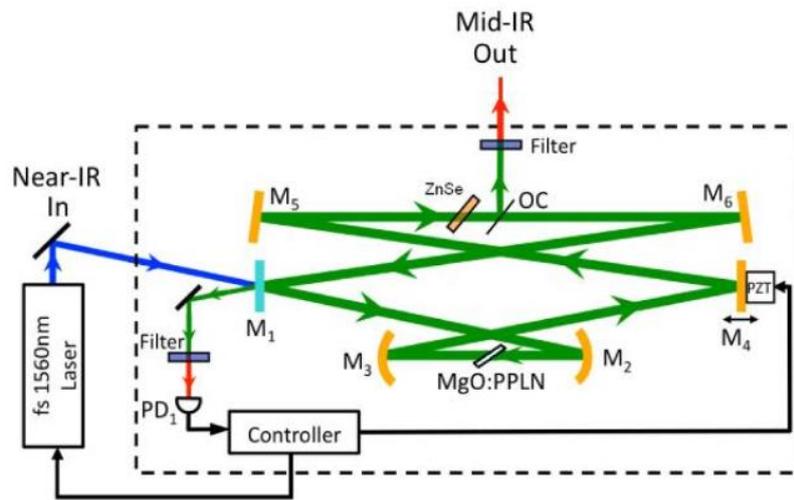


图 1.5 中红外飞秒光学频率梳实验装置[100]

Fig. 1.5 Experimental setup for Mid-IR OPO comb

上世纪30年代,德国原子物理物理学家Maria Goppert-Mayer首次提到了双光子吸收现象[102],但是由于当时技术手段的限制,并没有在实验中观察到此现象。直到上世纪60年代激光技术的出现,使人们首次在实验中观察到了双光子

吸收现象[103-104]。1990 年, 科学家 Denk 发明了世界上第一台双光子显微镜, 使显微成像的分辨率得到了很大提高[105]。双光子显微成像结合了双光子激发和激光扫描成像技术, 已成为生命科学领域的重要研究工具, 并已广泛的应用于遗传发育学、神经科学、临床医学等领域[106]。高重频宽带可调谐的飞秒激光器作为双光子显微镜的驱动源, 其激光输出特性直接决定了显微成像的效果。目前, 商用的双光子显微镜中, 如图 1.6 所示, 其超快激光系统通常采用 Ti:sapphire 振荡器, 重复频率在 80 MHz, 脉冲宽度约为 100 fs, 光谱调谐范围在 690-1040 nm。然而受到 Ti:sapphire 激光器自身的限制, 激光器成本比较高, 操作复杂, 维护成本高, 并且需要在苛刻的超净环境中使用, 很大程度上限制了其应用范围。与 Ti:sapphire 激光器相比, 飞秒 OPO 的光谱调谐范围更加广泛, 波长可以从紫外覆盖到中红外波段, 不但可以实现双光子吸收, 还可以满足多光子吸收条件。同时, 飞秒 OPO 只需要满足腔长匹配条件就可以实现稳定的锁模脉冲激光输出, 激光器运行更加稳定, 能够在各种复杂的环境中运转, 成本较低, 便于维护。

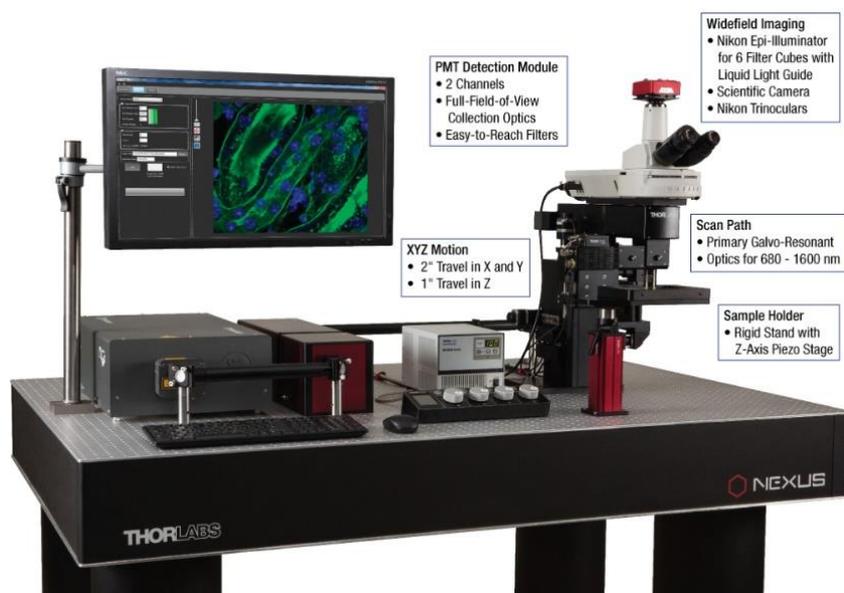


图 1.6 商用双光子显微成像系统

Fig. 1.6 Commercial two-photon microscope imaging system

1.4 论文选题意义及研究内容

高功率宽带可调谐的超短脉冲激光光源在科研、医疗、通信和国防等领域扮演着极为重要的角色, 成为当今激光技术领域研究的热点。飞秒 OPO 技术是伴随超短脉冲激光技术的发展而形成的一个新兴领域, 目前飞秒 OPO 的泵浦源主

要以 Ti:sapphire 振荡器为主, 受限于 Ti:sapphire 晶体的热效应, 激光器平均输出功率通常比较低, 很大程度上限制了 OPO 的平均输出功率。近年来, 随着半导体激光器的飞速发展, 二极管直接泵浦的全固态飞秒激光器逐渐进入人们的视野, 由于其具有结构紧凑、体积小、使用寿命长等优点, 目前已经逐步取代 Ti:sapphire 激光器成为飞秒 OPO 的泵浦源, 特别在输出功率方面, 全固态飞秒激光器具有很大优势, 为获得高功率的飞秒 OPO 激光脉冲奠定了基础。基于全固态激光器泵浦的飞秒 OPO 光源, 其波长调谐范围可以从紫外覆盖到中红外波段, 在生物成像、时间分辨光谱学、相干合成、THz 产生等领域有着重要的应用。本论文围绕这一热点, 致力于研究高功率的全固态飞秒激光器, 同时以该激光器作为泵浦源, 开展了一系列飞秒 OPO 研究工作, 论文主要包括以下几个内容:

第二章首先介绍了非线性光学频率变换理论, 基于麦克斯韦方程组和物质方程, 研究了非线性光学中的动力学过程, 通过耦合波方程组, 研究了三波混频过程, 介绍了光学参量过程中的相位匹配原理以及方法。然后重点介绍了同步泵浦的光学参量振荡器, 详细分析了谐振腔的类型和波长调谐方式。接下来介绍了全固态锁模理论, 对被动锁模方式进行了详细的分析, 特别是克尔透镜锁模和基于饱和吸收体的孤子锁模机制。最后给出了飞秒激光技术中常用的几种色散补偿方式, 重点介绍了啁啾镜和 GTI 镜的工作原理。

第三章主要介绍了高功率紫外-中红外宽带可调谐飞秒 OPO 的实验研究, 首先基于商用的 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器, 结合 KTA 和 KTP 晶体, 通过 OPO 方式最终实现了近红外-中红外的高功率、宽带可调谐飞秒激光输出, 其中信号光波长调谐范围在 1.41-1.71 μm , 最高平均输出功率为 2.32 W, 对应的闲频光光谱调节范围在 2.61-3.84 μm , 最高平均功率为 1.31 W, 整体转换效率高达 51.8%。采用啁啾镜进行腔内色散补偿, 最终获得的信号光最短脉冲宽度为 129 fs, 接近傅里叶极限变换脉冲。接下来, 利用 Yb:KGW 激光器倍频后的 515 nm 飞秒绿光作为泵浦源, 结合 BIBO 晶体, 分别在重复频率 75.5 MHz、151 MHz 和 755 MHz 的条件下, 研究了飞秒 OPO 的输出特性, 并在重复频率 75.5 MHz 的条件下, 利用腔外倍频的方式获得了 350-488 nm 的可调谐紫外飞秒激光, 整体输出功率在 50 mW 以上。最后研究了飞秒 BIBO-OPO 过程中的信号光双波长现象, 从理论

上分析了双波长的产生过程,通过适当的平衡泵浦光与信号光之间的相位匹配与群速度失配条件,最终实现了 700-1000 nm 的可调谐双波长飞秒激光输出。

第四章介绍了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 激光器的实验研究,首先从理论上解释了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 的锁模机制,同时对谐振腔内各元器件引起的材料色散进行了分析,最终实现了高重频自启动的 Ti:sapphire 锁模飞秒激光输出,在 3.6 W 的泵浦光功率下,获得的锁模功率为 256 mW,脉冲宽度为 12.7 fs。实验中将 Ti:sapphire 激光器的腔长设置在 0.993 m,对应的重复频率为 151 MHz,是泵浦源的 2 倍。

第五章介绍了 SESAM 锁模的 Yb:KGW 和 Yb:CGA 块状晶体全固态激光器实验研究,首先对两种晶体进行了详细介绍,接下来基于 Yb:KGW 晶体,获得了平均功率 7.6 W,单脉冲能量 97 nJ,峰值功率 0.606 MW 的高功率锁模飞秒激光。最后介绍了高功率 Yb:CGA 皮秒振荡器,对实验中得到的耗散孤子锁模进行了分析,最后实现了平均功率 10.3 W,单脉冲能量 127 nJ 的高功率皮秒激光输出。

第六章主要介绍了高重频宽带可调谐飞秒 OPO 在生物显微成像方面的应用,首先对飞秒 OPO 进行了工程化设计,接下来利用自主研发的宽带可调谐 OPO 作为激光驱动源,与中国科学院苏州医工所合作,成功开展了双光子显微成像实验研究,获得了较好的实验结果。

第七章对本论文的主要研究内容进行了总结,并对下一步需要完善以及相关的后续工作进行了展望。

第 2 章 非线性光学频率变换理论与全固态锁模原理

2.1 非线性光学频率变换理论

2.1.1 非线性光学基础

光波在非线性介质中传播时，光与物质的相互作用产生了非线性极化，光场 E 在介质中将产生非线性极化强度，极化强度 P 的表达式为[107]:

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E + \varepsilon_0 \chi^{(2)} : EE + \varepsilon_0 \chi^{(3)} : EEE + \dots = P_L + P_{NL} \quad (2-1)$$

其中， E 是光电场强度， P 为极化强度矢量， ε_0 是真空介电常数， $\chi^{(1)}$ 为线性极化系数， $\chi^{(2)}$ 是二阶非线性极化系数。公式右面第一项为线性极化项 P_L ，第二项为 P_{NL} 称为非线性极化项。本论文中主要涉及的是二阶非线性过程，即下面的理论只涉及二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}$ 。对于非线性极化强度 P_{NL} ,

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} : EE \quad (2-2)$$

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) \quad (2-3)$$

假设光场中存在 ω_1 和 ω_2 两个频率成分，电场强度可以表示为

$$E(t) = E_1(t)e^{-i\omega_1 t} + E_2(t)e^{-i\omega_2 t} + c.c. \quad (2-4)$$

当该光波在非线性介质中传播时，结合公式 (2-3) 和 (2-4)，二阶非线性极化强度可表示为

$$\begin{aligned} P^{(2)}_{NL}(t) &= \sum_n P(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (2-5) \\ &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^2(t) e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2(t) e^{-2i\omega_2 t} + \\ &\quad 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c.] + \\ &\quad 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1 E_1^* + E_2 E_2^*] \end{aligned}$$

由 (2-5) 中可以看出， $P^{(2)}_{NL}(t)$ 中包含了频率为 $2\omega_1$ 、 $2\omega_2$ 、 $\omega_1 + \omega_2$ 和 $\omega_1 - \omega_2$ 的极化成分，这些新的频率成分将会辐射出新的电磁波，为了方便讨论，(2-5) 可以表示为

$$P^{(2)}_{NL}(2\omega_1, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2(t) e^{-2i\omega_1 t} \quad (\text{SHG}) \quad (2-6)$$

$$P^{(2)}_{NL}(2\omega_2, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^2(t) e^{-2i\omega_2 t} \quad (\text{SHG})$$

$$P_{NL}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, t) = 2\varepsilon_0\chi^{(2)} \left[E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + C.C. \right] \quad (\text{SFG})$$

$$P_{NL}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2, t) = 2\varepsilon_0\chi^{(2)} \left[E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + C.C. \right] \quad (\text{DFG})$$

公式 (2-6) 中表现了这些二阶非线性效应相应的物理过程。

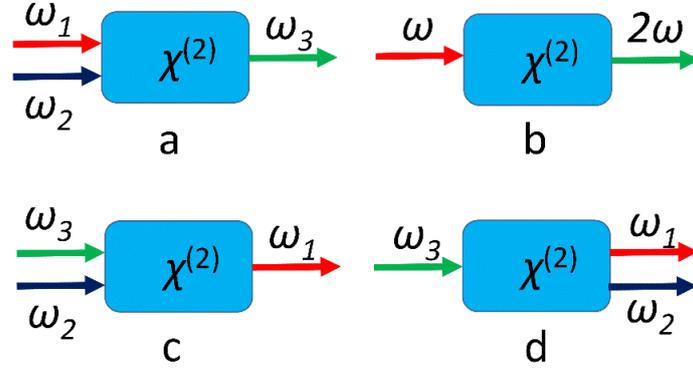


图 2.1 二阶非线性过程示意图: (a) SFG; (b) SHG; (c) DFG; (d) OPG & OPO

Fig. 2.1 Second-order nonlinear optical processes: (a) SFG; (b) SHG; (c) DFG; (d) OPG & OPO

如图 2.1 (a) 所示, 当两个不同频率的单色光 ω_1 和 ω_2 同时入射到非线性介质中, 将产生频率为 ω_3 的非线性极化强度, 进而由这个非线性极化强度产生频率为 ω_3 的光场, 这就是和频 (sum frequency generation, SFG) 的产生过程。特殊情况, 如图 2.1 (b), 当两个单色光频率相同时, 即 $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, 这时产生的和频光的频率为 $\omega_3 = 2\omega_1 = 2\omega$, 这就是倍频 (second harmonic generation, SHG) 过程, 倍频过程也可以看作是简并的和频过程。图 2.1 (c) 表示了差频 (difference frequency generation, DFG) 过程, 当 ω_3 和 ω_2 的光场入射到非线性介质中时, 将产生频率为 ω_1 的非线性极化强度, 进而产生频率为 ω_1 的光场, 差频过程也证明了光学参量放大 (optical parametric amplification, OPA) 过程的物理机制。与差频过程不同的是, OPA 是将一个强的高频光 (泵浦光) 和一个弱的低频光 (信号光) 同时入射到非线性介质中, 这时会产生一个差频光 (闲频光), 同时弱的低频光被放大。图 2.1 (d) 描述了光参量产生 (optical parametric generation, OPG) 和光参量振荡 (optical parametric oscillator, OPO) 过程, 也称为频率下转换, 它可以看作是和频的逆过程, 如果将非线性介质置于谐振腔中, 让信号光、闲频光其中一个或者二者同时多次通过非线性介质, 则它们可以得到多次放大, 这就构成了一个完整的光学参量振荡器。

只有在很强的光场条件下才能产生比较明显的非线性效应,普通光源所产生的光电场很难观察到非线性光学现象。随着激光技术的诞生,非线性光学得到了迅速发展,相继发现了二次谐波产生(倍频)、和频、差频、受激布里渊散射、受激拉曼散射、双光子吸收、饱和吸收、光参量振荡、光参量放大等非线性光学现象。20世纪90年代以来,随着高功率克尔透镜锁模的 Ti:sapphire 飞秒激光器、掺 Yb³⁺的飞秒光纤放大器和固体激光器的日益成熟,非线性光学的发展方向是利用飞秒激光器与新型非线性晶体相结合,研制高功率、大能量的宽带可调谐光参量振荡器和光参量放大器。利用高功率超短脉冲激光器,结合新型的非线性晶体(BIBO, CSP等),可以开拓新的相干光波段,提供从远红外(8 μm-14 μm)到亚毫米波、从真空紫外到 X 射线,乃至 THz 波段的相干光源。非线性光学的兴起也带动了其他交叉学科的飞速发展,非线性激光光谱学的出现,大大提高了光谱分辨率;通过对非线性光学相位共轭效应的研究,产生了非线性光学相位共轭技术,促进了自适应光学的发展;在光纤和光波导非线性光学中,研究了光孤子的产生和传输机制,促进了光纤通信技术的发展。非线性光的本质是研究光与物质的相互作用,因此非线性光学可以用来探索物质内部结构与变化。

2.1.2 非线性耦合波方程组

根据上一节的讨论,在非线性光学理论中,物质的非线性极化导致新频率的产生,光在非线性介质中的传播由麦克斯韦方程组(Maxwell's equations)或其导出的波动方程支配,根据麦克斯韦方程组和物质方程[108]:

$$\begin{aligned}
 \nabla \times E &= -\frac{\partial B}{\partial t} & \nabla \times H &= J + \frac{\partial D}{\partial t} \\
 \nabla \cdot D &= 0 & \nabla \cdot B &= 0 \\
 D &= \varepsilon_0 \varepsilon E + P \\
 B &= \mu_0 H
 \end{aligned} \tag{2-7}$$

其中, D 为电位移矢量, H 为磁场强度, E 是光电场的复振幅, B 为磁通量, μ_0 为真空磁导率。根据公式(2-7),通过计算、化简后最终得到非磁、均匀电介质中的波动方程:

$$\nabla^2 E = \mu_0 \sigma \frac{\partial E}{\partial t} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (2-8)$$

式中 ε_0 为真空介电常数。在典型的二阶非线性过程中，通常都是三个光波的相互作用：

$$E_j(z, t) = \frac{1}{2} \left[E(z, \omega_j) e^{-i(k_j z - \omega_j t)} \right] + c. c \quad (2-9)$$

$$P_j(z, t) = \frac{1}{2} \left[P(z, \omega_j) e^{-i(k_j z - \omega_j t)} \right] + c. c. \quad (2-10)$$

式中 $j=1, 2, 3$ 分别表示不同的光场， k 是波数，可表示为：

$$k = \frac{n(\omega)}{c} \omega \quad (2-11)$$

式中 $n(\omega)$ 是光波频率为 ω 时的折射率， c 为光在真空中的传播速度，可以表示为

$$n = n(\omega) = \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}} \quad (2-12)$$

其中 $\varepsilon(\omega)$ 是介质对频率为 ω 的光波的磁导率。根据慢变近似条件：

$$\left| \frac{\partial E(z, \omega)}{\partial z} k \right| \gg \left| \frac{\partial^2 E(z, \omega)}{\partial z^2} \right| \quad (2-13)$$

由公式 (2-3)、(2-9)、(2-10) 和 (2-13) 可以得到：

$$\frac{\partial E(z, \omega)}{\partial z} = \frac{i \mu_0 \omega^2(z, \omega)}{2k} \cdot P_{NL}(z, \omega) e^{-i(kz - \omega t)} \quad (2-14)$$

若考虑到振幅随时间 t 的变化，通过求解可以得到暂态波耦合波方程：

$$\frac{\partial E(z, \omega)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E(z, \omega)}{\partial t} = \frac{i \mu_0 \omega^2(z, \omega)}{2k} \cdot P_{NL}(z, \omega) e^{-i(kz - \omega t)} \quad (2-15)$$

其中 v_g 为波包的群速度，公式 (2-15) 适用于脉冲宽度较短的锁模激光，可以用来模拟锁模超短脉冲激光的非线性效应。

对于三波混频过程，根据晶体的二阶非线性极化效应，有三个频率分别为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的光波相互作用，他们之间满足关系 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ ，频率为 ω_3 的光的振幅正比于 ω_1 和 ω_2 振幅的乘积，入射的 ω_1 和 ω_2 的能量不断的耦合到频率为 ω_3 的光波中，各频率对应的极化强度分别为[109]：

$$\begin{aligned} P_{NL1}(z, \omega_1) &= \varepsilon_0 \chi(-\omega_1; -\omega_2, \omega_3) : E_2^*(\omega_2) e^{-k_2 z} E_3(\omega_3) e^{k_3 z} \\ P_{NL2}(z, \omega_2) &= \varepsilon_0 \chi(-\omega_2; -\omega_1, \omega_3) : E_1^*(\omega_1) e^{-k_1 z} E_3(\omega_3) e^{k_3 z} \\ P_{NL3}(z, \omega_3) &= \varepsilon_0 \chi(\omega_3; -\omega_1, -\omega_2) : E_1^*(\omega_1) e^{-k_1 z} E_2^*(\omega_2) e^{-k_2 z} \end{aligned} \quad (2-16)$$

将公式 (2-16) 带入 (2-14)，最终通过化简可以得到：

$$\begin{aligned}\frac{\partial E(z, \omega_1)}{\partial z} &= \frac{i\omega_1}{cn_1} d_{eff} E_2^*(z, \omega_2) E_3(z, \omega_3) e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial E(z, \omega_2)}{\partial z} &= \frac{i\omega_2}{cn_2} d_{eff} E_1^*(z, \omega_1) E_3(z, \omega_3) e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial E(z, \omega_3)}{\partial z} &= \frac{i\omega_3}{cn_3} d_{eff} E_1^*(z, \omega_1) E_2^*(z, \omega_2) e^{-i\Delta kz}\end{aligned}\quad (2-17)$$

公式 (2-17) 称为三波混频的耦合波方程组[109], 其中 $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$, $d_{eff} = \chi_{eff}/2$, 称为有效非线性系数。利用上述联立的方程组, 考虑到光强 I_i 与振幅 E_i 有如下关系[107]:

$$I_i = \frac{1}{2} \varepsilon_0 cn_i |E_i|^2 \quad (i=1,2,3) \quad (2-18)$$

根据曼利-罗关系,

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_3}{\omega_3} \right) = -\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_1}{\omega_1} \right) = -\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_2}{\omega_2} \right) \quad (2-19)$$

由于存在关系 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$, 所以可以得到

$$\frac{\partial}{\partial z} (I_1 + I_2 + I_3) = 0 \quad (2-20)$$

$$I_1 + I_2 + I_3 = \text{constant} \quad (2-21)$$

公式 (2-20) 和 (2-21) 表明, 物质对光场的非线性响应使参与相互作用的三个光波之间发生了能量交换, 三波在相互作用过程中, 它们所具有的光场的总能量是不变的。频率为 ω_3 的光波每增加一个光子, 那么频率为 ω_1 和 ω_2 的光波都要减少一个光子。基于耦合波方程组, 下面主要对几个典型的参量转换过程进行介绍。

1. 倍频过程

对于倍频过程, 分别以 ω 和 2ω 表示基频光和倍频光的频率, 根据耦合波方程组[110]:

$$\frac{\partial E_\omega(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{cn_\omega} d_{eff} E_{2\omega}(z) E_\omega^*(z) e^{i\Delta kz} \quad (2-22)$$

$$\frac{\partial E_{2\omega}(z)}{\partial z} = \frac{i2\omega}{2cn_{2\omega}} d_{eff} E_\omega(z) E_\omega^*(z) e^{-i\Delta kz} \quad (2-23)$$

其中满足 $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega}$ ，当产生的倍频光能量较小时，可近似的认为在整个相互作用的过程中基频光的振幅不发生变化，可以把 $E(\omega, z)$ 看作常数，即所谓的小信号近似。假设介质的入射面无二次谐波，根据初始条件：

$$E_{\omega}(z)|_{z=0} = E_{\omega}(0), E_{2\omega}(z)|_{z=0} = 0 \quad (2-24)$$

设晶体长度为 L ，由 (2-23) 直接积分可得：

$$E_{2\omega}(L) = -i \frac{2\pi L d_{eff}}{n_{2\omega} \lambda_{\omega}} E_{\omega}^2(0) \operatorname{sinc} \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) e^{i \frac{\Delta k L}{2}} \quad (2-25)$$

利用 (2-18) 式，可得光强 I ，

$$I_{2\omega} = \frac{8\pi^2 L^2 d_{eff}^2 I_{\omega}^2}{\epsilon_0 c n_{\omega}^2 n_{2\omega} \lambda_{\omega}^2} \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (2-26)$$

因此倍频效率为

$$\eta = \frac{S_{2\omega}}{S_{\omega}} = \frac{2\omega^2}{\epsilon_0 c^3 n_{2\omega} n_{\omega}^2} d_{eff}^2 \frac{S_{\omega}}{A} L^2 \frac{\operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (2-27)$$

当 $\Delta k = 0$ 时， η 达到最大值

$$\eta = \frac{S_{2\omega}}{S_{\omega}} = \frac{2\omega^2}{\epsilon_0 c^3 n_{2\omega} n_{\omega}^2} d_{eff}^2 \frac{S_{\omega}}{A} L^2 \quad (2-28)$$

此时有 $n_{2\omega} = n_{\omega} = n$ ，因而方程 (2-22) 和 (2-23) 可以化简为

$$\frac{\partial E_{\omega}(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{cn} d_{eff} E_{2\omega}(z) E_{\omega}^*(z) \quad (2-29)$$

$$\frac{\partial E_{2\omega}(z)}{\partial z} = \frac{i\omega}{cn} d_{eff} E_{\omega}(z) E_{\omega}^*(z) \quad (2-30)$$

解方程可得

$$I_{\omega} = I_{\omega}(0) \operatorname{sech}^2 \left[\frac{\omega d_{eff}}{cn} z \left(\frac{2I_{\omega}(0)}{nc\epsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (2-31)$$

$$I_{2\omega} = I_{\omega}(0) \tanh^2 \left[\frac{\omega d_{eff}}{cn} z \left(\frac{2I_{\omega}(0)}{nc\epsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (2-32)$$

这反映了它们随着相互作用距离 z 的消长规律，图 2.2 是基频光和倍频光振幅随着距离的变化关系[109]，其中 l 为特征长度，

$$l = \frac{cn}{\omega d_{\text{eff}}} \left(\frac{nc\varepsilon_0}{2I_\omega(0)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2-33)$$

在 $\Delta k=0$ 的情况下，二次谐波的场振幅从零开始，随着 z/l 而逐渐增大，当 $z=l$ 时，已经有一半的基频光功率转化为二次谐波的功率。从理论上出发，最后基频光功率全部转变为二次谐波的功率。事实上，由于激光脉冲类型是高斯光束，所以对上述的描述还需要进一步修正。

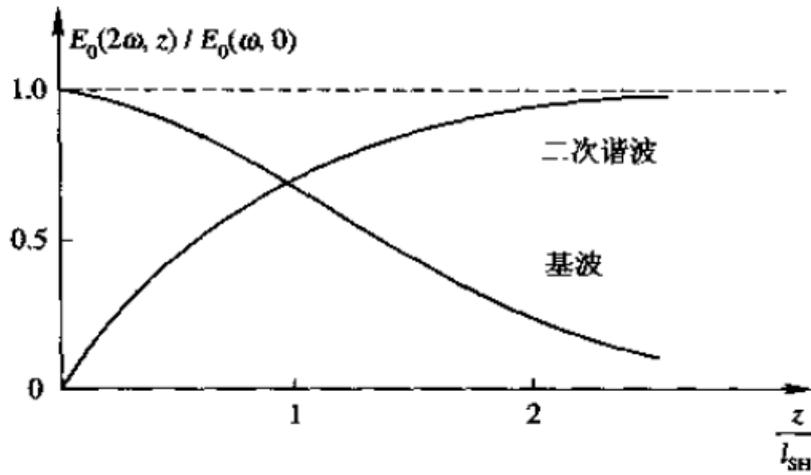


图 2.2 基波和二次谐波振幅随着距离的变化关系[109]

Fig 2.2 Variation of fundamental and second harmonic amplitude as a function of distance

2. 和频过程

对于和频过程，在共线（沿 z 轴方向）传播的前提下，其产生过程可由三波混频方程组（2-17）来描述。当和频转换效率比较低时，可采用小信号近似，即认为在相互作用过程中频率为 ω_1 和 ω_2 的入射光波振幅不发生变化，此时方程（2-17）中 ω_3 的场振幅的解为：

$$E(\omega_3, z) = \frac{i\omega_3^2}{k_3 c^2} d_{\text{eff}} E(\omega_1, 0) E(\omega_2, 0) z \quad (2-34)$$

如果将每个频率的光电场用实振幅 $E_0(\omega, z)$ 和相位常数 φ_ω 来表示，那么

$$E(\omega_i, z) = \frac{1}{2} E_0(\omega_i, z) e^{-i\varphi_{\omega_i}} \quad (2-35)$$

其中 $i=1,2,3$ ，将（2-35）式代入（2-34）式，便有

$$E(\omega_3, z) = \frac{\omega_3^2}{K_3 c^2} d_{eff} E_0(\omega_1, 0) E_0(\omega_2, 0) e^{i\left(\varphi_{\omega_3} - \varphi_{\omega_2} - \varphi_{\omega_1} \pm \frac{\pi}{2}\right)z} \quad (2-36)$$

同时满足

$$\varphi_{\omega_3} - \varphi_{\omega_2} - \varphi_{\omega_1} \pm \frac{\pi}{2} = 0 \quad (2-37)$$

公式 (2-36) 和 (2-37) 在理论上表明频率为 ω_3 的和频光的振幅随着 z 线性的增加, 而实际情况中, 和频光 ω_3 会出现饱和现象。

光学和频是一种特殊的频率上转换过程, 这时频率为 ω_2 的光波作为泵浦光, 其光强很大, 它使得入射频率为 ω_1 ($\omega_1 \ll \omega_2$) 的弱红外光经过和频转换后, 变成频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的可见、紫外或深紫外光。假设泵浦光的光强在整个相互作用过程中并不会随着 ω_3 的光波的产生而变化, 即

$$E(\omega_2, z) = E(\omega_2, 0) = \text{constant} \quad (2-38)$$

设定 $E(\omega_2, 0)$ 为实数, 由 (2-10) 可得

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_1(z)}{\partial z} &= \frac{i\omega_1}{cn_1} d_{eff} E_3(z) E_2(0) e^{-i\Delta kz} \\ \frac{\partial E_3(z)}{\partial z} &= \frac{i\omega_3}{cn_3} d_{eff} E_1(z) E_2(0) e^{i\Delta kz} \end{aligned} \quad (2-39)$$

当 $\Delta k = 0$ 时, 利用初始条件, $E(\omega_3, 0) = 0$, $E(\omega_1, 0) \neq 0$, 可得 (2-39) 方程组的解为

$$E(\omega_1, z) = E(\omega_1, 0) \cos(qz) \quad (2-40)$$

$$E(\omega_3, z) = i \left[\frac{n_1 \omega_3}{n_3 \omega_1} \right]^{\frac{1}{2}} E(\omega_1, 0) \sin(qz) \quad (2-41)$$

其中

$$q = \left[\frac{\omega_1 \omega_3}{n_1 n_3} \right]^{\frac{1}{2}} \frac{d_{eff}}{c} E(\omega_2, 0) \quad (2-42)$$

利用光强与振幅之间的关系 (2-18), 即可以得到光波 ω_1 和 ω_3 的光强随相互作用距离 z 的变化关系:

$$I(\omega_1, z) = I(\omega_1, 0) \cos^2(qz) \quad (2-43)$$

$$I(\omega_3, z) = \frac{\omega_3}{\omega_1} I(\omega_1, 0) I(\omega_1, 0) \sin^2(qz) \quad (2-44)$$

从上式可以看出，它们是符合曼利-罗关系的，即每增加一个频率为 ω_3 的光子，便会较少一个频率为 ω_1 的光子，但是在 $E(\omega_2, z)$ 和 $E(\omega_2, 0)$ 为常数的条件下，它们似乎不符合曼利-罗关系。在实际过程中，频率为 ω_2 的泵浦光在相互作用过程中也要减少一个光子，假定泵浦光光强不发生变化只是一个近似条件。

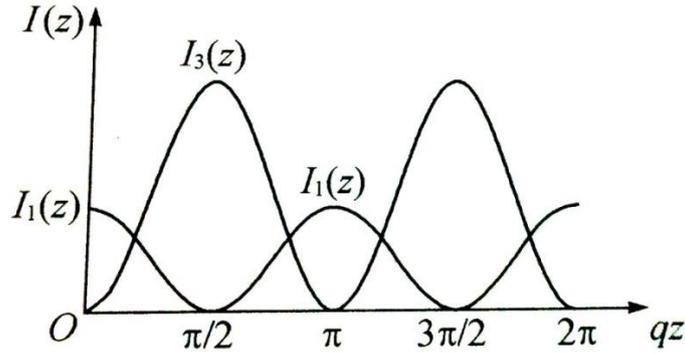


图 2.3 频率为 ω_1 和 ω_3 的光波的光强随相互作用距离 z 的变化[109]

Fig 2.3 Variation of ω_1 and ω_3 amplitude as a function of z

如图 2.3 所示，开始时，频率为 ω_1 的光波光强随 z 而逐渐减小，然而频率为 ω_3 的和频光波的光强逐渐增大，这时能量由前者转移到后者。当相互作用距离 z 增大到 $qz=\pi/2$ 后，过程则朝相反方向进行。初始时刻，光波 ω_3 的光强为零， ω_1 的光波的能量通过与泵浦光波 ω_2 和频后将能量转移给 ω_3 ，使得后者的光强逐渐增大；但是当 ω_3 的光强增大时，又会与 ω_2 产生 $\omega_3-\omega_2=\omega_1$ 的差频过程，并将其能量转回给 ω_1 。当 q 值较大时，能量转移速度较快，这时相互作用时间 z 即使不大也会使过程发生逆转；而当 q 值较小时，要使过程逆转则需要满足较大的相互作用距离这一条件。

3. 差频过程

对于差频过程，同样利用耦合波方程组 (2-17)，根据小信号近似条件，假定入射光波的振幅为 $E_0(\omega_3, z)$ 和 $E_0(\omega_1, 0)$ ，在相互作用过程中不发生变化，即为常数。此时频率为 ω_2 的差频光的振幅为：

$$E(\omega_2, z) = \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} d_{\text{eff}} E_0(\omega_1, 0) E_0(\omega_3, 0) z \quad (2-45)$$

以及

$$\varphi_{\omega_3} - \varphi_{\omega_2} - \varphi_{\omega_1} \pm \frac{\pi}{2} = 0 \quad (2-46)$$

在实际过程中，利用两束近红外的激光进行差频，是产生波长较长的红外激光的主要方法之一。在小信号近似条件下，即满足条件 $\partial E_p / \partial z \approx 0$ ，方程组(2-17)转化为以下的耦合波方程组：

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_s(z)}{\partial z} &= \frac{i\omega_s}{n_s c} d_{eff} E_p(z) E_i^*(z) e^{-i\Delta k z} \\ \frac{\partial E_i(z)}{\partial z} &= \frac{i\omega_i}{n_i c} d_{eff} E_p(z) E_s^*(z) e^{-i\Delta k z} \end{aligned} \quad (2-47)$$

为解上述方程组，初始条件设为： $E_i=0$ ， $E_s \neq 0$ ，通过求解 z 的常微分方程组可以得到小信号近似条件下的信号光增益系数：

$$G = \frac{E_s(z)}{E_s(0)} = 1 + (\Gamma z)^2 \left(\frac{\sinh B}{B} \right) \quad (2-48)$$

其中：

$$\begin{aligned} B &= [(\Gamma z)^2 - \left(\frac{\Delta k z}{2} \right)^2]^{\frac{1}{2}} \\ \Gamma &= 4\pi d_{eff} \left(\frac{I_p}{2\varepsilon_0 n_p n_s n_i c \lambda_s \lambda_i} \right)^{\frac{1}{2}} \end{aligned}$$

式中 I_p 为入射泵浦光的光强，闲频光的振幅可以表示为

$$E_i(z) = \frac{i\omega_i d_{eff}}{n_i c B} E_p E_s^*(0) \sinh(B) e^{-i\Delta k z / 2} \quad (2-49)$$

由(2-48)和(2-49)可以看出，信号光和闲频光的场振幅与相位失配量 Δk 密切相关，当 Δk 约等于 0 时，参量转换效率最高。一般情况下，相位失配量 Δk 和晶体长度 L 应该满足以下条件：

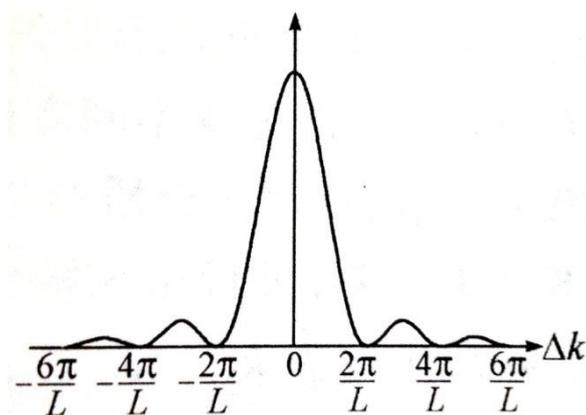
$$|\Delta k| L < \pi \quad (2-50)$$

当 $\Delta k L \approx \pi$ 时，信号光增益约为峰值增益的 0.4 倍，同时也可以看出， Δk 受到晶体长度 L 的限制。 $\Delta k=0$ 时，称为相位匹配， $\Delta k \neq 0$ 时，称为相位失配，这时参量转换效率会急速下降。

2.1.3 相位匹配技术

在上一节导出的耦合波方程组 (2-17) 中, 可以知道相位失配量 Δk 起着重要的作用。若想利用非线性晶体获得高效率参量转换, 需要满足一定的相位匹配条件。光波在晶体中相互作用时, 只有当 $\Delta k=0$ 时, 三个光波之间的相互作用才能得到加强, 这时才会有新频率的产生, 我们称 $\Delta k=0$ 为相位匹配条件。

以二次谐波说明相位匹配角的原理过程, 根据光学二次谐波输出的光强和转换效率公式 (2-26) 和 (2-27), 式中都含有小于或者等于 1 的因子 $\sin^2(\Delta kl/2)/(\Delta kl/2)^2$, 其中 $\Delta k=k_{2\omega}-2k_{\omega}$, 为二次谐波的波矢 $k_{2\omega}$ 与产生该倍频光的倍频极化波矢 $2k_{\omega}$ 之差。当满足相位匹配条件时, $\Delta k=0$, 即失配量为 0 时, 此时 $\sin^2(\Delta kl/2)/(\Delta kl/2)^2=1$, 此时二次谐波输出功率最大, 倍频转换效率也最高。然而当不满足相位匹配条件时, 这时 $\Delta k \neq 0$ 时, 二次谐波的输出功率将随着失配量 Δk 的变化而改变。如图 2-4 所示, 当相位失配 $\Delta k=0$ 时, \sin 函数取最大值, 二次谐波功率最大。当 $\Delta k \neq 0$ 时, 二次谐波输出功率由最大值开始下降; 当 $|\Delta k|$ 增大到 $2\pi/l$ 时, 输出功率降到 0; 然后随着 $|\Delta k|$ 的继续增大, 输出功率又略微有所增大; 当 $|\Delta k|$ 增大到 $4\pi/l$ 时, 功率又降为 0。经过反复变化后, 二次谐波的输出功率逐渐减弱并趋于 0。同样, 如果确定了相位失配量 Δk , 二次谐波输出功率将随着相互作用距离 l 而改变。刚开始时, 二次谐波的输出功率将随着 l 增大而增大, 当达到输出功率的最大值后, 又开始下降。当 l 再次增大至 $l=2\pi/\Delta k$, 二次谐波的输出功率为 0。在相位失配条件下, 当基频光与二次谐波的相互作用距离 l 大于相干长度时, 二次谐波的转换效率会降低。

图 2.4 倍频光输出强度随着 Δk 的变化[109]Fig 2.4 the output power of SH pulse as a function of Δk

相位匹配在非线性光学中的光学混频和参量过程中具有非常重要的意义。任何非线性光学混频和参量过程产生的相干辐射，都是由非线性介质中通过非线性效应形成的同频率的极化波产生的。在满足相位匹配的条件下，即要求光波波矢与相应极化波波矢相同，其物理本质是要求光波传播的相速度与产生它的极化波的相速度相同，只有这样，极化波所在空间位置上辐射的光波的相位才是相同的，在经过相干叠加以后其光强是相长的，从而获得更高的转换效率。

从量子角度来讲，三波相互作用过程中介质与光场之间不发生能量交换，即每产生一个频率为 ω_3 的光子，都会湮灭一个频率为 ω_1 和 ω_2 的光子，同时满足动量守恒和能量守恒条件：

$$\hbar k_1 + \hbar k_2 = \hbar k_3 \quad (2-51)$$

$$\hbar \omega_3 = \hbar \omega_1 + \hbar \omega_2 \quad (2-52)$$

即

$$k_1 + k_2 = k_3 \quad (2-53)$$

其中 \hbar 为普朗克常量， $k_j(j=1,2,3)$ 分别为频率为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 的波矢，若三束光波的波矢都在同一条直线上，即满足共线相位匹配，如图 2.5 (a) 所示，这时相位匹配条件为：

$$n_3 \omega_3 = n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 \quad (2-54)$$

而当三束光波的波矢不在同一条直线上时，称为非共线相位匹配，如图 2-5 (b) 所示，这时波矢 k_1 与 k_2 之间存在一个夹角，为了获得超宽带的参量脉冲，非共线相位匹配是普遍推崇的方案之一。这种情况下，信号光波矢的变化可以通过闲频光波矢长度和角度的双重变化来补偿，从而在很宽的光谱范围内都满足相位匹配条件，可以获得几个光学周期量级的增益谱宽。

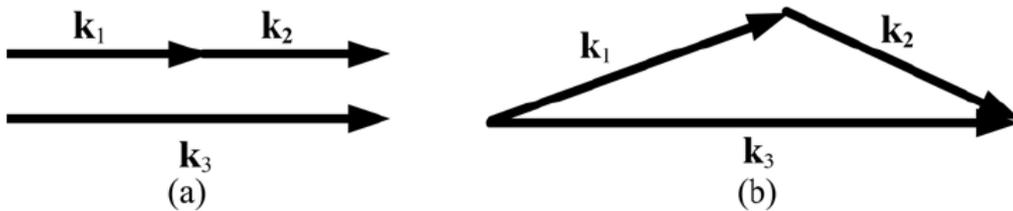


图 2.5 (a)共线相位匹配；(b)非共线相位匹配

Fig. 2.5 (a) linear phase matching; (b) non-linear phase matching

2.1.4 相位匹配方法

实现相位匹配条件的方式主要包括以下几种：

(1)利用晶体的双折射特性来补偿色散，主要包括角度相位匹配和温度相位匹配。

(2)利用缓冲气体提供必要的色散，最终实现相位匹配条件。

(3)准相位匹配技术，可以通过在非线性介质中构造周期性结构（非线性光子晶体），引入与经典波长相比拟的结构，通过调整介电体超晶格的倒格矢，从而改变超晶格的周期，最终补偿由于折射率色散引起的相位失配。

这里我们主要介绍晶体中的相位匹配方法。

对于非线性光学晶体，可以分为单轴晶体和双轴晶体。以单轴晶体为例，光波在单轴晶体中的传播方式分为寻常光 o 和非常光 e 。其中非常光 e 的折射率随着光轴与波矢之间的夹角 θ 而变化

$$n_e(\omega, \theta) = \frac{n_o(\omega)n_e(\omega)}{\sqrt{n_o^2(\omega)\sin^2\theta + n_e^2(\omega)\cos^2\theta}} \quad (2-55)$$

以共线传播的二次谐波为例，基频光为 o 光，倍频光为 e 光，图 2.6 描绘了基频光 ω 与二次谐波 2ω 的折射率曲面：前者由折射率较小的球面(o 光折射率)和椭球面 (e 光折射率) 构成，后者由折射率较大的球面和椭球面构成。对于 o 光和 e 光，总有 $n_{2\omega} > n_\omega$ ，当 $n_e(\theta, 2\omega) = n_o(\omega)$ 时，即满足相位匹配条件，此时 θ_m 称为相位匹配角。

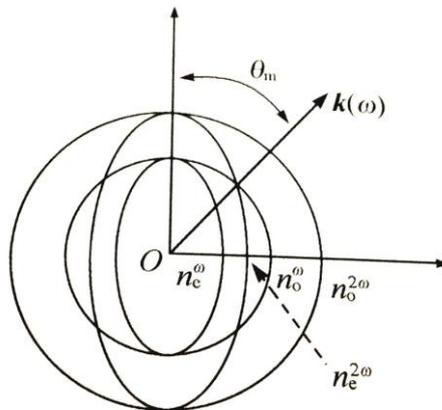


图 2.6 负单轴晶体相位匹配折射率曲面示意图

Fig. 2.6 Schematic diagram of the phase matching index surface of refraction in uniaxial negative crystal

根据入射光偏振方向的不同,角度相位匹配可以分为 I 类相位匹配和 II 类相位匹配。

(1) 单轴晶体相位匹配方式

单轴晶体的主轴在 z 轴方向,并且具有对称性。其波矢含有两个偏振态垂直的简正模,分别为 o 光和 e 光;当非常光的折射率 n_e 大于寻常光的折射率 n_o ,即 $n_e > n_o$ 时,称为正单轴晶体;反之,当 $n_e < n_o$,称为负单轴晶体。具体匹配方式如下:

$$\begin{aligned} \text{正单轴晶体匹配:} \quad & \text{I 类} \quad e + e \rightarrow o \\ & \text{II 类} \quad o + e \rightarrow o \\ \text{负单轴晶体匹配:} \quad & \text{I 类} \quad o + o \rightarrow e \\ & \text{II 类} \quad e + o \rightarrow e \end{aligned}$$

(2) 双轴晶体相位匹配方式

对于双轴晶体,其折射率曲面在直角坐标系中是四次曲面,并且对称性较差,沿波矢方向有两个偏振方向相互垂直的简正模,均为 e 光。通常情况下,根据折射率大小和晶体中的传播速度可将它们分为快光和慢光,折射率较大的称为快光,较小的称为慢光。用 e_1 和 e_2 分别表示慢光和快光的偏振态,具体相位匹配方式如下:

$$\begin{aligned} \text{双轴晶体匹配} \quad & \text{I 类} \quad e_1 + e_1 \rightarrow e_2 \\ & \text{II 类} \quad e_1 + e_2 \rightarrow e_2 \end{aligned}$$

2.1.4.1 角度相位匹配

通常情况下,参与相互作用的三个光波之间的频率是一定的,当它们通过非线性介质时可以利用角度相位匹配来实现相位匹配条件,使三个光波的折射率满足关系 (2-46),下面主要对单轴晶体的相位匹配角进行介绍:

(1) 负单轴晶体($n_e < n_o$) I 类相位匹配($o+o \rightarrow e$)

入射的两束光 ω_1 和 ω_2 为 o 光,产生的光波 ω_3 为 e 光,相位匹配条件为:

$$n_3(\theta)\omega_3 = n_{1o}\omega_1 + n_{2o}\omega_2 \tag{2-56}$$

其中 n_{1o} 和 n_{2o} 分别表示 ω_1 和 ω_2 的折射率, ω_3 的折射率为:

$$n_3(\theta) = \left(\frac{\sin^2 \theta}{n_{3e}^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_{3o}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2-57)$$

将 (2-57) 代入 (2-56)，可以求得相位匹配角为

$$\theta_m = \arcsin \left[\frac{n_{3e}^2 \left[\omega_3^2 n_{3o}^2 - (n_{1o} \omega_1 + n_{2o} \omega_2)^2 \right]^{\frac{1}{2}}}{(n_{1o} \omega_1 + n_{2o} \omega_2)^2 (n_{3o}^2 - n_{3e}^2)} \right] \quad (2-58)$$

(2) 负单轴晶体 ($n_e < n_o$) II 类相位匹配 ($e+o \rightarrow e$)

入射光 ω_1 为 o 光， ω_2 为 e 光，产生的光波 ω_3 为 e 光，相位匹配条件为

$$n_3(\theta) \omega_3 = n_{1o} \omega_1 + n_2(\theta) \omega_2 \quad (2-59)$$

对于负单轴晶体的第 II 类相位匹配角 θ_m 不能从 (2-59) 式中得到显式解

$$n_{1o} \omega_1 + \left(\frac{\sin^2 \theta_m}{n_{2e}^2} + \frac{\cos^2 \theta_m}{n_{2o}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \omega_2 = \omega_3 \left(\frac{\sin^2 \theta_m}{n_{3e}^2} + \frac{\cos^2 \theta_m}{n_{3o}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2-60)$$

(3) 正单轴晶体 ($n_e > n_o$) I 类相位匹配 ($e+e \rightarrow o$)

入射光 ω_1 和 ω_2 为 e 光，产生的光波 ω_3 为 o 光，相位匹配条件为

$$n_1(\theta) \omega_1 + n_2(\theta) \omega_2 = n_3 \omega_{3o} \quad (2-61)$$

相位匹配角满足

$$\omega_1 \left(\frac{\sin^2 \theta_m}{n_{1e}^2} + \frac{\cos^2 \theta_m}{n_{1o}^2} \right)^{\frac{1}{2}} + \omega_2 \left(\frac{\sin^2 \theta_m}{n_{2e}^2} + \frac{\cos^2 \theta_m}{n_{2o}^2} \right)^{\frac{1}{2}} = n_{3o} \omega_3 \quad (2-62)$$

(4) 正单轴晶体 ($n_e > n_o$) II 类相位匹配 ($o+e \rightarrow o$)

入射光 ω_1 为 o 光， ω_2 为 e 光，产生的 ω_3 为 o 光，相位匹配条件为

$$n_{1o} \omega_1 + n_2(\theta) \omega_2 = n_{3o} \omega_3 \quad (2-63)$$

相位匹配角为

$$\theta_m = \arcsin \left[\frac{n_{2e}^2 \left[(n_{3o}\omega_3 - n_{1o}\omega_1)^2 - \omega_2^2 n_{2o}^2 \right]}{(n_{3o}\omega_3 - n_{1o}\omega_1)^2 (n_{2e}^2 - n_{2o}^2)} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2-64)$$

特别的，当 ω_1 和 ω_2 的频率相等时，将产生二次谐波，即二倍频过程，表 2-1 展示了倍频过程中相位匹配条件以及偏振关系。

表 2-1 单轴晶体倍频相位匹配方式与偏振关系

	负单轴晶体		正单轴晶体	
	I 类	II 类	I 类	II 类
偏振关系	$o+o \rightarrow e$	$e+o \rightarrow e$	$e+e \rightarrow o$	$o+e \rightarrow o$
相位匹配条件	$n_e(\omega) = n_e(\theta, 2\omega)$	$\frac{1}{2}[n_e(\theta, \omega) + n_o(\omega)] = n_e(\theta, 2\omega)$	$n_e(\theta, \omega) = n_e(2\omega)$	$\frac{1}{2}[n_e(\omega) + n_e(\theta, \omega)] = n_o(2\omega)$

综上所述，采用角度相位匹配方法操作起来比较容易，但是其还存在一些不利的因素，例如空间走离效应，输入光发散引起的相位失配，输入光谱宽度引起的相位失配等。

2.2 光学参量振荡器

光学参量振荡器是非线性光学频率变换的重要组成部分，其结构简单，运行可靠，随着一些性能优良非线性晶体的出现，光学参量振荡器以其高功率、高重复频率、宽带可调谐等特点在国际光学界引起了广泛的关注。

光学参量振荡器是由光学谐振腔和非线性晶体组成，其中非线性晶体用作参量耦合元件。将一束较强的高频泵浦激光 (ω_p , 泵浦光) 入射到非线性晶体上，每湮灭一个高频的光子 ω_p ，同时会产生两个低频的光子 ω_s 和 ω_i ，在此过程中这两个低频光子获得增益，通常情况下，把产生的波长较短的那部分激光称为信号光 (ω_s)，波长较长的那部分称为闲频光 (ω_i)。泵浦光、信号光和闲频光要同时满足能量守恒和动量守恒关系

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (2-65)$$

$$k_p = k_s + k \quad (2-66)$$

由公式 (2-65) 和 (2-66) 可以看出, 波长的宽带可调谐功能是所有光学参量振荡器的基本特征。

与传统的激光器相同, 光学参量振荡器的运转条件为谐振腔中的单程增益必须大于损耗。在这里, 特别应强调的是, 光学参量振荡器是优秀的相干光光源, 并且目前广泛使用的激光振荡器也是比较好的相干光源, 但是它们的物理机制不同。在参量过程中, 将一束较强的泵浦光聚焦后入射到处于谐振腔中的非线性晶体, 当增益超过损耗时, 就可以从噪声中建立起相当强的信号光和闲频光, 即高频的泵浦光产生了低频的信号光和闲频光子。

2.2.1 光参量振荡器类型

光学参量振荡器的类型有很多, 对于不同的工作条件、工作状态和泵浦方式, 可以分为不同的类型, 而且各类型具有各自的优缺点。

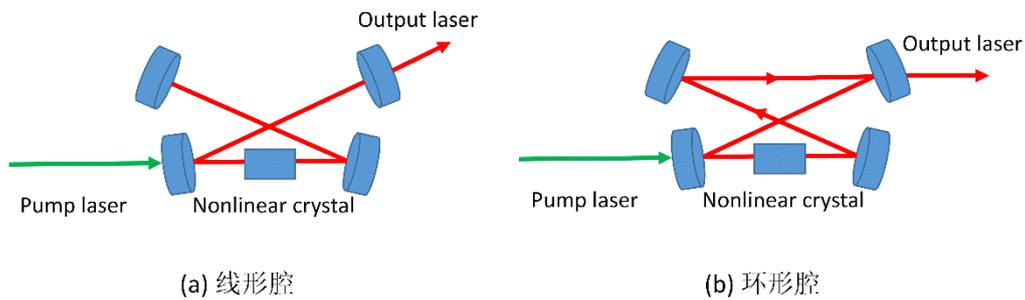


图 2.7 光参量振荡器谐振腔类型: (a)线形腔; (b)环形腔

Fig. 2.7 The cavity designs for deploying the OPOs: (a) linear cavity; (b) ring cavity

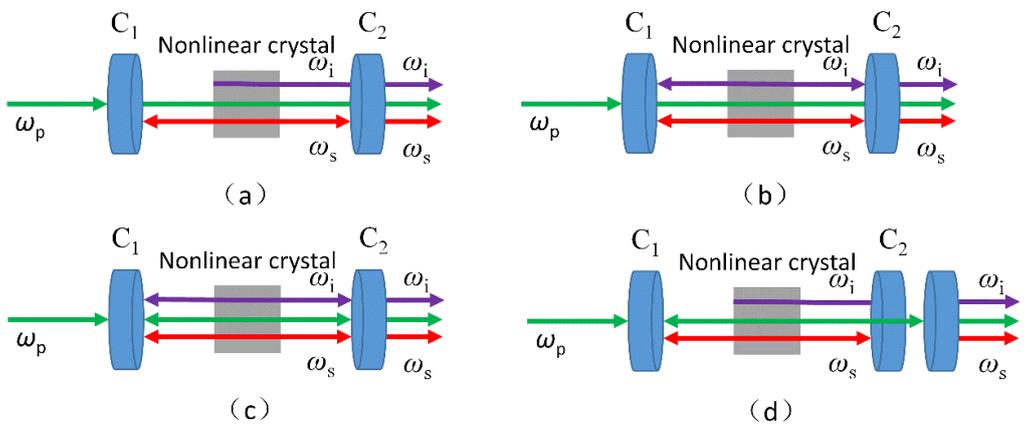


图 2.8 光参量振荡器腔型: (a)单谐振光参量振荡器; (b)双谐振光参量振荡器;
(c)三谐振光参量振荡器; (d)泵浦增强式单谐振光参量振荡器

Fig. 2.8 OPO cavity (a) single resonant OPO; (b) double resonant OPO; (c) triply resonant OPO; (d) pump enhanced-SRO

光参量振荡器主要采用分立式结构，即非线性晶体和谐振腔是分离的。如图 2.7 所示，按照谐振腔的结构可以分为线形腔（Linear Cavity）和环形腔（Ring Cavity）。线形腔为驻波腔，优点在于操作简单，调节容易，不足之处是光脉冲在腔内往返一周的过程中要来回两次通过非线性晶体，在反向通过时可能会导致信号光与闲频光逆转换回泵浦光，从而限制了参量转换效率，同时脉冲受到的材料色散影响比较大。但是，线形腔的优点在于可以进行双向泵浦，即将透过非线性晶体的泵浦光重新收集后通过光学元件反过来又对晶体进行二次泵浦，使得信号光脉冲往返经过晶体时都能得到增益。而环形腔为行波腔，在这种腔型结构中，脉冲往返一周只通过一次非线性晶体，减弱了逆转换效应，同时降低了晶体色散对脉冲的影响。利用环形腔结构可以降低泵浦阈值，提高稳定性，同时入射泵浦光和反射的泵浦光不在同一条直线上，不需要进行隔离。相比于线形腔，环形腔可以方便的在腔内插入标准具等选频器件，在相同的腔长条件下可以提高信号光脉冲的重复频率。环形腔的缺点在于操作起来比较复杂，调节起来比较困难，不易实现波长的宽带可调谐。

光学参量振荡器根据腔内振荡光波的数目，主要可以分为以下四种。如图 2.8 (a) 中所示，光学参量振荡器中最普遍的是单谐振光参量振荡器（single resonant optical parametric oscillator, SRO），这种谐振腔只对信号光或者闲频光其中一个提供振荡，从图中可以看出，双色镜对泵浦光的透过率较高，对信号光的透过率较低，通常情况下，输出耦合镜对信号光的反射率在 80%-95% 之间。SRO 的优势在于，只满足信号光或闲频光其中一个在谐振腔内振荡，不存在不同波长的激光模式竞争，因此输出激光的功率稳定性较好，参量转换效率较高，并且 SRO 结构设计比较简单，调节方便。如果信号光和闲频光都在谐振腔内振荡，如图 2.8 (b) 所示，这种同时谐振的光学参量振荡器称为双共振光参量振荡器（doubly resonant optical parametric oscillator, DRO），这时泵浦阈值比较低，同时稳定性和可调谐性也降低了。当满足泵浦光、信号光和闲频光三者同时在谐振腔内振荡时，这种腔型称为三谐振光参量振荡器（triply resonant optical parametric oscillator, TRO），如图 2.8 (c) 所示，与 DRO 相比，TRO 的泵浦阈值更低，可以小于 1 mW。如图 2.8 (d) 所示，这种腔型称为泵浦增强式单谐振光参量振荡器（pump

enhanced-SRO, PE-SRO), 这时泵浦光连同信号光或者闲频光其中一个在腔内振荡。

2.2.2 同步泵浦的光学参量振荡器

前面曾经提到, 光学参量振荡器中的增益来源于非线性介质中光波之间的耦合效应, 是瞬时的非线性过程, 因此在光参量过程中不存在能量积累, 并且波长调谐可以通过相位匹配条件和能量守恒得以实现。超短脉冲激光技术的迅速发展, 对其泵浦的光学参量振荡器和光学参量放大器具有极大的促进作用。当采用高功率的皮秒和飞秒激光器作为泵浦源时, 通常采用同步泵浦的方式, 即 OPO 的重复频率要跟泵浦光的重复频率相匹配, 只有这样信号光每次经过非线性晶体后才会被放大, 当信号光在 OPO 腔中的增益大于损耗时, 信号光的能量将越来越大, 最后获得参量光输出。

与传统的锁模激光器相比, 同步泵浦 OPO 具有许多优点, 除了满足输出波长宽带可调谐之外, 同步泵浦 OPO 的输出脉冲相对于泵浦脉冲表现出更低的抖动性, 这使得其在时间分辨光谱学、相干合成、激光通信、生物显微成像和泵浦探测等方面具有广泛的应用。同步泵浦 OPO 的波长调谐方式主要有晶体角度调谐、晶体温度调谐、泵浦光波长调谐、谐振腔腔长调谐、准相位晶体周期调谐等。到目前为止, 采用同步泵浦 OPO 的方式可以获得从 UV (300 nm) 到中红外波段 (18 μm) 的连续可调谐飞秒激光脉冲。

2.2.3 非线性晶体简介

非线性光学晶体作为光学频率变换的核心部件[111], 从实用角度来看, 其应该具备以下条件[112-113]:

- (1) 较宽的透光范围, 通光带宽至少要求一个倍频程;
- (2) 较大的有效非线性系数;
- (3) 适中的双折射率, 能够实现相位匹配, 并且相位匹配允许的角度范围、线宽范围、温度范围较大;
- (4) 优良的物理化学性能, 如光学均匀性好, 对光的吸收损耗较小, 具有高的激光损伤阈值, 不潮解, 机械强度高, 容易生长成大块体积等。

2.3 全固态锁模原理与技术

自从激光器问世以来,如何获得更短脉冲宽度的激光光源一直是人们研究的热点。早在 1962 年,科学家们就利用调 Q 方式得到了脉冲宽度为 10^{-7} s 量级的激光输出。随后几年里,相继出现了声光调 Q,电光调 Q 等多种调 Q 方式,激光的输出功率呈直线上升,压缩的脉冲宽度也取得了显著的进展。但是,由于在 Q 开关激光器中建立起脉冲需要一定时间,故得到的最短脉宽为 10 ns 量级。锁模技术是比调 Q 技术更为有效的超短激光脉冲产生技术,应用锁模技术,就可以直接从固体激光器中获得皮秒、甚至飞秒量级的超短脉冲。飞秒脉冲的产生最早是在染料激光器中发现的。1981 年,R. L. Fork 等人在染料激光器中获得了 90 fs 的锁模激光输出,但是染料激光器结构复杂,不易维护,因此很难普及。与此同时,人们也在探索新的增益介质,以实现锁模激光的脉宽的新突破。直到 1991 年,D. E. Spence 等人利用克尔透镜锁模的 Ti:sapphire 激光器,获得了 60 fs 的超短脉冲,从而引领了飞秒超快激光研究的快速发展与广泛应用的繁荣时代。

随着锁模理论的提出,先后出现了多种锁模技术,主要分为主动锁模和被动锁模两种方式[114]。主动锁模是指将电光或者声光调制器置于激光器谐振腔内,并加以适当的调制电压,使得谐振腔的损耗发生周期性变化。由于损耗的改变,每个模式的振幅也发生周期性变化,最后当腔内的增益大于损耗时,就可以得到较短的脉冲激光。主动锁模的优点是可靠性高,复现性好。被动锁模技术主要依靠可饱和吸收效应引起的自振幅调制作用(Self-Amplitude Modulation, SAM),这种可饱和吸收体会对谐振腔内的激光振幅引入一定的损耗,当光场强度较弱时,吸收损耗比较大,而光场强度较强时吸收损耗比较小,当达到某个特定值时吸收达到饱和,这时激光透过率达到 100%,饱和吸收体就被漂白了,吸收损耗降低为零。上述的这种可饱和吸收效应可以利用真正的可饱和吸收体来实现,例如 SESAM、石墨烯或者黑磷等,也可以通过虚拟的饱和吸收体产生,例如克尔透镜效应,下面我们主要介绍被动锁模技术。

2.3.1 被动锁模原理

被动锁模激光器中脉冲的形成可以分为以下三个阶段[115]:如图 2.9 所示,即(a)线性放大阶段、(b)非线性吸收阶段和(c)非线性放大阶段。

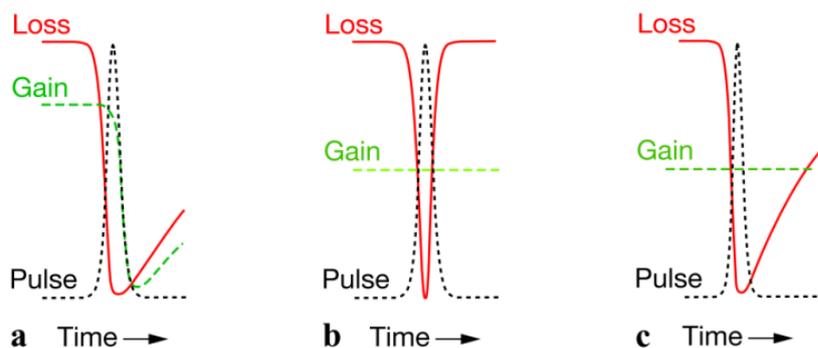


图 2.9 三种不同的被动锁模机制[123]: (a)慢饱和吸收;
(b)快饱和吸收; (c)孤子锁模

Fig. 2.9 Different passively mode locking mechanism (a) slow saturable absorber;
(b) fast saturable absorber; (c) soliton mode locking

根据饱和吸收体的恢复时间, 被动锁模可以分为慢饱和吸收锁模[116-117]、快饱和吸收锁模[118]和孤子锁模[119-122]。如图 2.9 (a) 所示, 对于慢饱和吸收锁模机制[123], 其中“慢”是指可饱和吸收体的恢复时间要比激光脉冲宽度大很多, 但是要小于激光在谐振腔内往返一次的时间。在这种锁模机制中, 在慢饱和吸收体和增益共同作用下形成动态增益窗口, 当增益饱和和吸收损耗达到平衡时, 超短脉冲在这个窗口内建立并且达到稳定。前面提到的染料激光器, 锁模方式就属于这种机制。尽管染料激光器具有较大的增益截面, 但是其上能级寿命比较短, 通常在 ns 量级, 虽然可饱和吸收体的恢复时间比较慢, 但是染料介质的增益随着脉冲能量的增加而急剧下降, 与可饱和吸收体形成动态增益窗口, 当损耗大于增益时, 形成稳定的锁模脉冲。而对于固体激光器而言, 增益介质的上能级寿命要比染料激光器大很多, 一般在 μs 或者 ms 量级, 同时增益截面较小, 因此固体激光器的增益饱和能量要大于腔内的脉冲能量, 在锁模形成过程中, 增益不会出现饱和, 而是维持在某一个固定值上。这时产生的超短脉冲所需要的净增益窗口由可饱和吸收体来提供, 如图 2.9 (b) 所示, 窗口的关闭是由于可饱和吸收体恢复吸收损耗进而使得增益小于损耗导致的, 这种机制需要一个恢复时间可以和脉冲宽度相比拟的可饱和吸收体来实现锁模, 通常情况下, 传统皮秒量级的固体激光器的被动锁模就属于快饱和吸收体锁模机制。为了获得脉宽更短的激光脉冲, 科学家们通过实验发现, 在全固态激光器中存在一种特殊的锁模方式, 在这种锁模机制下, 得到的激光脉冲宽度远远小于可饱和吸收体的恢复时间, 这就是孤子

锁模机制，如图 2.9 (c) 所示。利用孤子锁模机制，当激光腔内脉冲的群速度色散 (GVD) 和自相位调制 (SPM) 达到平衡时，就可以产生远小于可饱和吸收体恢复时间的超短脉冲激光，此时激光脉冲宽度可以达到飞秒量级，比皮秒量级的净增益窗口窄很多，基本不受饱和吸收体恢复时间的限制。

2.3.2 克尔透镜锁模原理

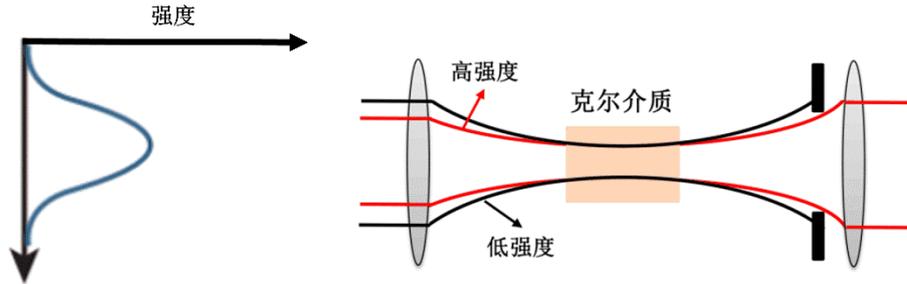


图 2-10 克尔透镜锁模机理

Fig. 2.10 The mode locking mechanism of Kerr-lens

之前提到，利用克尔透镜效应实现锁模是一种简单而方便的产生超短脉冲的方法。克尔透镜锁模原理是激光增益介质中的非线性克尔效应使谐振腔中的激光束产生了自聚焦效应[124-125]。在这个过程中，介质的折射率 n 不再是一个常数，它的变化依赖于入射光光强 $I(t)$ ，可以表示为：

$$n = n_0 + n_2 I(t) \quad (2-67)$$

其中 n_0 为常数， n_2 为非线性折射系数。公式 (2-67) 表明增益介质的折射率是随着入射光光强的变化而发生改变，而发生变化的折射率同时会对入射的光脉冲产生影响，如图 2-10 所示，这种效果就好像是光束通过了一个正透镜一样，对入射激光产生了汇聚作用，这就是自聚焦效应[126]。通过计算可以得到自聚焦效应的焦距：

$$f = \frac{\omega^2}{2n_2 I_0 l} = \frac{\pi \omega^4}{4n_2 P l} \quad (2-68)$$

其中 ω 为光束的束腰半径， I_0 为峰值强度， P 为激光峰值功率， l 为克尔介质的长度。克尔透镜效应实现锁模就是利用了自聚焦作用，如图 2.11 所示[114]。为了保证克尔透镜锁模的稳定运行，谐振腔需要工作在稳区边缘，同时还需要引入一个启动机制，可以通过移动腔镜或者棱镜来实现。

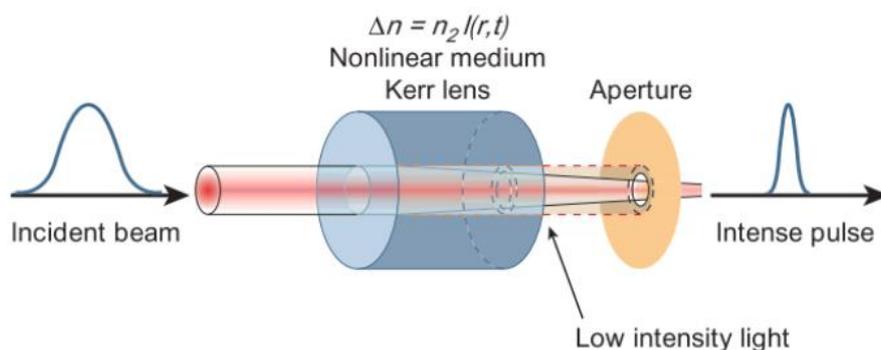


图 2.11 克尔透镜锁模示意图[114]

Fig. 2.11 Schematic diagram of Kerr-lens mode locking

克尔透镜锁模机制的提出,为人们开展固体飞秒激光研究提供了新的探索方向。特别是 P. F. Moulton 发明了 Ti:sapphire 晶体,该晶体具有优良的光学性质,其吸收谱和荧光发射谱都非常宽,是迄今为止可见光-近红外波段荧光发射谱最宽的激光增益介质。另外 Ti:sapphire 具有优良的物化性质,其热导率和硬度都比较高, Ti:sapphire 晶体的出现引领了飞秒超快激光研究的快速发展与广泛应用的繁荣时代。

2.3.3 SESAM 锁模原理

1992 年, U. Keller 等人首次利用一种新型的可饱和吸收体 semiconductor saturable absorber mirror (SESAM), 在 Nd:YLF 晶体中成功实现了稳定的连续锁模激光输出[127]。SESAM 可以利用分子束外延法直接生长在半导体布拉格反射镜上,是将半导体可饱和吸收体和反射镜结合在一起的一种新型锁模器件,只要合理的设计 SESAM 的宏观参数(饱和通量,调制深度和载流子寿命等),就可以获得稳定的连续锁模激光输出。

SESAM 之所以可以启动锁模,主要是因为它的高速时间特性。它包含两个特征弛豫时间:带内热平衡和带间跃迁。如图 2.12 所示,当激光的功率密度较强时,价带上的粒子吸收能量后被激发到导带,并且达到饱和状态,这一过程就是带内热平衡过程;当脉冲经过饱和吸收体后,载流子会发生诱捕和重新复合回到初态,从而引起吸收的完全恢复,这一过程称为带间跃迁过程,特征时间在皮秒甚至纳秒量级。在 SESAM 锁模过程中,带间跃迁形成了纳秒到皮秒量级的脉冲,而带内热平衡进一步将脉冲压缩到飞秒量级。

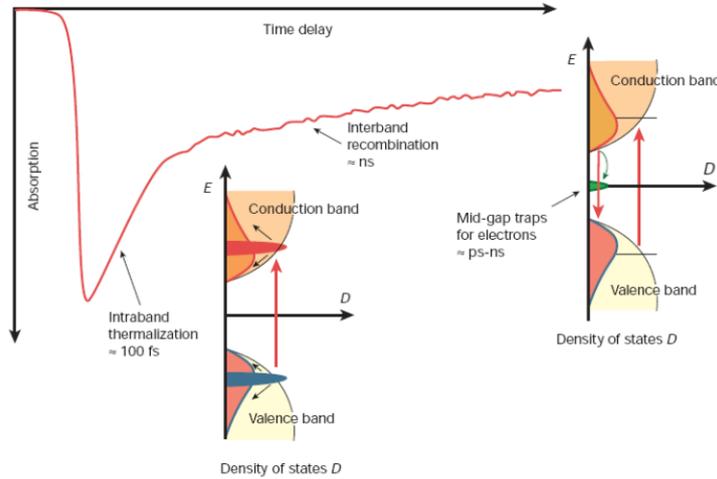


图 2.12 半导体可饱和吸收体的时间特性以及物理机制[114]

Fig. 2.12 The time characteristics and physical mechanism of the SESAM

由于 SESAM 具有以上时间特性，所以可以用作实现自启动锁模的可饱和吸收镜。对于 SESAM 来说，其宏观参数主要有调制深度 ΔR ，非饱和损耗 ΔR_{ns} ，饱和通量 $F_{sat,A}$ ，饱和光强 $I_{sat,A}$ ，脉冲响应时间 τ_A 等。图 2.13 给出了 SESAM 宏观参数的物理意义[114]，这些参数决定了被动锁模激光器的特性。饱和吸收体的吸收率为 $A=\Delta R+\Delta R_{ns}$ ，透过率为 $T=1-R-A$ ，其中 R 为饱和吸收体对入射光的反射率。饱和通量 $F_{sat,A}$ 的定义为

$$F_{sat,A} = \frac{hv}{2\sigma_A} \quad (2-69)$$

其中 hv 为光子能量， σ_A 为吸收截面， $I_{sat,A}$ 定义为

$$I_{sat,A} = \frac{F_{sat,A}}{\tau_A} \quad (2-70)$$

式中 τ_A 为脉冲响应时间。饱和通量 $F_{sat,A}$ 和饱和光强 $I_{sat,A}$ 影响着锁模脉冲的建立和稳定性，而脉冲响应时间 τ_A 则决定了锁模的主要机制。

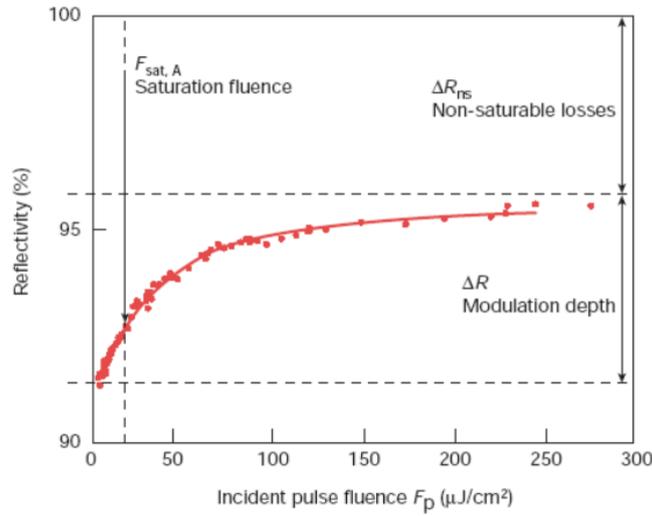


图 2.13 SESAM 宏观特性

Fig. 2.13 Macroscopic property of SESAM

SESAM 的出现，使全固态激光器进入了飞速发展的新阶段，到目前为止，SESAM 仍然是除克尔透镜锁模技术以外，全固态激光器实现被动锁模的首选器件，并在大量不同增益介质的固体激光器中都获得了一系列的成果。SESAM 锁模与克尔透镜锁模的区别如表 2-2 所示：

表2-2 克尔透镜与SESAM 锁模区别

克尔透镜锁模	SESAM锁模
虚拟的可饱和吸收体	真实的可饱和吸收体
不依赖波长	依赖波长
不存在双光子吸收	存在双光子吸收
脉冲响应时间较短 (<10 fs)	脉冲响应时间较长 (<1 ps)
调制深度较大 (>5%)	调制深度有限 (<2%)
损伤阈值高	损伤阈值低
不需要专门制造，价格低廉	生产工艺复杂，价格昂贵
谐振腔调节较困难	谐振腔调节容易
无法实现自启动	可以实现自启动

2.4 色散补偿技术

对于超短激光脉冲，无论是全固态激光器还是光学参量振荡器，增益介质和非线性晶体都会引入一定的材料色散，从而在时域上对脉冲进行展宽。为了得到接近傅里叶极限变换脉宽的超短脉冲，通常需要进行色散补偿，常用的色散补偿

元件主要有：啁啾镜、Gires-Tournois 干涉镜（GTI 镜）、棱镜对、光栅对等。本文中主要采用的是啁啾镜和 GTI 镜，下面重点介绍这两种色散补偿器件。

2.4.1 啁啾镜

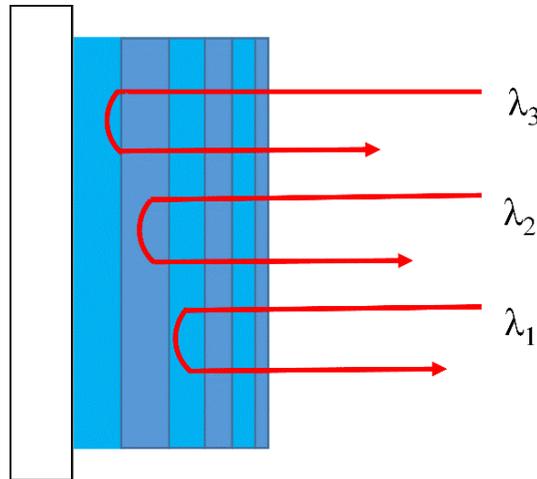


图 2.14 啁啾反射镜示意图：不同波长分量在膜系内不同的位置获得反射，
其中， $\lambda_3 > \lambda_2 > \lambda_1$

Fig. 2.14 Schematic diagram of the chirped mirrors: wavelength components reflected in different positions within the membrane system, $\lambda_3 > \lambda_2 > \lambda_1$

啁啾镜（chirped mirrors）的概念最早由 R. Szipocs 和 F. Krausz 等人提出[128-129]。啁啾镜实际上是双膜系反射镜和多层膜系反射镜的延伸。其基本思路是，利用多层镀膜技术，使不同波长的光谱成分入射到镜片上透射的厚度不同，从而实现不同波长经历不同光程的目的。到目前为止，啁啾镜的设计方法主要有傅里叶变换法，阻抗匹配法（双啁啾）和宽带滤波器法。对于 Ti:sapphire 增益介质，由于其荧光发射谱比较宽，因此在谐振腔中需要使用覆盖更宽带宽的啁啾镜，但是无论怎样设计，都不能完全消除群延迟曲线的振荡，因此最好是让群延迟振荡配对，即一个反射镜的振荡方向与另一个相反，从而使得合成的群延迟色散曲线是平坦的[130]。因此在实验中，啁啾镜通常采用两两配对使用，同时，啁啾镜具有较宽的色散补偿带宽，而且可以在同一片啁啾镜上多次反射，减小元件数量和整个激光系统体积[131]。

2.4.2 GTI 镜

GTI 镜其本质是一种特殊的反射式法布里-玻罗干涉仪。GTI 镜的一面对入射光反射率接近 100%，另一面部分反射。从图 2-15 中可以看出，入射光角度不同，GTI 镜对色散量的改变也不相同。GTI 镜片单次提供的二阶色散如下[132]:

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{2t_0^2\sqrt{R}(1-R)\sin\omega t_0}{(1+R-2\sqrt{R}\cos\omega t_0)^2} \quad (2-71)$$

$$t_0 = \frac{2nd\cos\theta}{c} \quad (2-72)$$

其中， d 为 GTI 镜膜层厚度， θ 为入射角。从公式 (2-71) 可以看出，群延迟色散随入射角 θ 和 GTI 镜膜层厚度 d 的变化可以实现正色散和负色散的巨大变化，而且与波长呈非线性关系，因此可以通过调节入射角的方法来调节色散。GTI 镜的优势在于它的反射损耗比较小，设计简单，单次提供的色散量较大，通常大于 1000 fs^2 。而不足之处在于其带宽较窄且不平坦，不能实现精细的色散补偿，因此 GTI 镜一般在百飞秒量级的固体激光器中使用[133]。

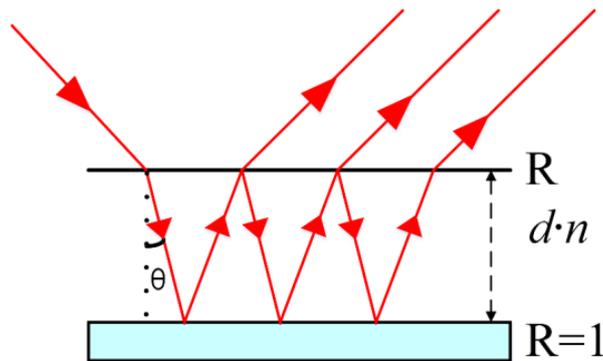


图 2.15 GTI 镜示意图

Fig. 2.15 Schematic diagram of the GTI mirrors

2.5 本章小结

本章首先介绍了非线性光学频率变换的基本原理，从麦克斯韦方程组和物质方程出发，研究了非线性光学中的动力学过程，重点介绍了相位匹配原理及方法。对同步泵浦 OPO 的腔型、调谐特性以及非线性晶体的选择进行了详细的理论研究和讨论。然后介绍了超短激光脉冲产生原理，详细介绍了被动锁模方式中的克

尔透镜锁模和 SESAM 锁模原理，最后对超短脉冲的色散补偿技术进行了分析，并对实验中用到的啁啾镜和 GTI 镜进行了简单的介绍。

第3章 高功率紫外-中红外宽带可调谐飞秒 OPO 实验研究

本章以掺 Yb^{3+} 的 KGW 全固态飞秒振荡器作为泵浦源，利用 KTP、KTA、BIBO、BBO 等作为非线性晶体的光学参量振荡器，通过腔外倍频的方式，最后实现了波长从紫外覆盖到中红外的高功率、宽带可调谐的飞秒激光输出。

3.1 高功率近红外-中红外宽带可调谐飞秒 OPO

高功率、高重频、波长宽带可调谐的近红外-中红外飞秒激光，在时间分辨光谱学、强场物理、激光雷达、生物医学等领域有着重要的应用。受到激光增益介质激发光谱的限制，飞秒激光器直接输出的超短脉冲中心波长一般被限定在特定的范围，且调谐范围有限。目前中红外激光大多都是基于近红外超快激光驱动的光参量下转换技术而实现的。利用同步泵浦 OPO 的方式可以将近红外激光频率变换到中红外，并且可以获得宽带可调谐的飞秒脉冲，是目前获得高质量中红外飞秒激光最简洁而有效的办法。最初实现中红外飞秒 OPO 的方法是采用克尔透镜锁模的 Ti:sapphire 振荡器作为泵浦源，同时结合准相位匹配晶体（如掺氧化镁的周期性极化铌酸锂晶体，MgO:PPLN）。1991 年，K. C. Burr 等人利用 Ti:sapphire 振荡器作为泵浦源，结合 MgO:PPLN 晶体，采用 OPO 的方式最终获得了波长范围在 1.68-2.72 μm 的可调谐中红外飞秒激光输出。然而，受到 Ti:sapphire 晶体热效应的影响，其振荡器输出功率比较低，由它直接泵浦的 OPO 产生的中红外飞秒激光输出功率也比较低。同时，采用准相位匹配晶体作为非线性晶体时，由于准相位匹配晶体材料本身的特性，它引入的材料色散比较大，同时无法承受较高的泵浦功率，最终导致产生的中红外飞秒激光的脉冲宽度比较宽。近年来，随着掺 Yb^{3+} 的全固态飞秒激光器和光纤放大器的迅速发展，其表现出了优良的性能，并有望在将来成为一种广泛应用的超短脉冲光源。对于 Ti:sapphire 振荡器，它的泵浦源一般是价格昂贵的腔内倍频 Nd:YVO₄ 激光器，成本较高。而掺 Yb^{3+} 的飞秒激光器可由半导体激光器（LD）直接泵浦，这使得该系统转换效率高、结构紧凑、成本低廉。本实验采用 Light Conversion 公司的商用 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器作为泵浦源，结合 KTA 和 KTP 晶体，最终实现了高功率、高重频、宽带可调谐的近红外-中红外飞秒激光输出。

3.1.1 KTP 与 KTA 晶体简介

1. KTP 晶体

KTP (磷酸钛氧钾, KTiOPO_4) 是用于近红外和中红外波段最优良的非线性晶体之一, 其有效非线性系数和激光损伤阈值比较高, 透光波段较宽。其主要性质如下[134-135]:

透光波段: 0.35-4.5 μm ;

损伤阈值: 2-3 GW/cm^2 (10 Hz, 11 ns @1064nm) ;

非线性系数: $d_{31}=6.5 \times 10 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{52}=5.0 \times 10 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{33}=13.7 \times 10 \text{ pm}/\text{V}$,

$d_{24}=7.6 \times 10 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{15}=6.1 \times 10 \text{ pm}/\text{V}$;

电光系数: $r_{13}=9.5 \text{ pm}/\text{V}$;

密度: 3.01 g/cm^3 ;

比热: 0.1737 $\text{cal}/\text{g} \cdot ^\circ\text{C}$ (1 cal=4.1868 J) ;

吸收系数: <0.1%/cm @ 1064 nm, <1%/cm @ 532nm;

II类相位匹配条件下的有效非线性系数:

$$d_{\text{eff}} \approx (d_{24}-d_{15})\sin 2\varphi \sin 2\theta - (d_{15}\sin 2\varphi + d_{24}\cos 2\varphi)\sin \theta;$$

KTP 为正双轴晶体, 设主轴为 x 、 y 、 z , ($n_x > n_y > n_z$), 各主轴折射率的 Sellmeier 方程如下:

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 3.0065 + 0.03901 / (\lambda^2 - 0.04251) - 0.01327\lambda^2 \\ n_y^2 &= 3.0333 + 0.04154 / (\lambda^2 - 0.04547) - 0.01408\lambda^2 \\ n_z^2 &= 3.3134 + 0.05694 / (\lambda^2 - 0.05658) - 0.01682\lambda^2 \end{aligned} \quad (3-1)$$

KTP 晶体以其优良的性能广泛应用于超短脉冲激光的频率变换, 中红外激光产生以及 OPO 等非线性光学技术领域。

2. KTA 晶体

KTA (砷酸钛氧钾, KTiOAsO_4) 是另外一种可应用于近红外和中红外波段非线性频率变换的优良晶体。与 KTP 相比, KTA 在兼备了高损伤阈值, 以及大的接受角和相位匹配带宽的同时, 其优势在于其具有更高的有效非线性系数, 更长的中红外截止波长, 特别是在 3.5 μm 处不存在吸收。KTA 的主要性能参数如下[134-135]:

透光波段: 0.35-5.3 μm ;

损伤阈值: 1.2 GW/cm^2 (20 Hz, 8 ns @1064nm) ;

非线性系数: $d_{31} = 2.76 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{32} = 4.74 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{33} = 18.5 \text{ pm}/\text{V}$,

$d_{15} = 2.3 \text{ pm}/\text{V}$, $d_{24} = 3.2 \text{ pm}/\text{V}$;

电光系数: $r_{13} = 11.5 \text{ pm}/\text{V}$;

密度: 3.454 g/cm^3 ;

吸收系数: $<0.05\%/\text{cm}$ @ 1064 nm, $<0.05\%/\text{cm}$ @ 1533 nm,

$<5\%/\text{cm}$ @ 3475 nm;

II类相位匹配条件下的有效非线性系数:

$$d_{\text{eff}} \approx d_{32} \sin \theta;$$

KTA 晶体同样属于正双轴晶体, 其 n_x , n_y , n_z 主轴折射率的 Sellmeier 方程如下:

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 3.1413 + 0.04683 / (\lambda^2 - 0.04055) - 0.01023 \lambda^2 \\ n_y^2 &= 3.1593 + 0.04828 / (\lambda^2 - 0.04710) - 0.01049 \lambda^2 \\ n_z^2 &= 3.4435 + 0.06571 / (\lambda^2 - 0.05435) - 0.01460 \lambda^2 \end{aligned} \quad (3-2)$$

KTA 晶体具有优良的光学物化性质, 尤其是在波段 2.0-5.0 μm 之间, 对光的吸收急剧下降, 其较低的离子电导率使它相比于 KTP 具有更高的损伤阈值。KTA 晶体广泛的应用于中红外激光的产生。

3.1.2 近红外-中红外飞秒 OPO 理论模拟



图 3.1 商用 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器

Fig. 3.1 The commercial Yb:KGW solid-state femtosecond oscillator

实验中采用泵浦源是商用的 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器, 如图 3.1 所示, 飞秒激光输出的中心波长在 $1.03 \mu\text{m}$, 平均功率为 7 W , 脉冲宽度接近 100 fs , 重复频率为 75.5 MHz , 光束质量 $M^2 < 1.2$ 。

OPO 主要由谐振腔和非线性晶体组成, 其中 KTA 和 KTP 晶体作为 OPO 的核心器件, 晶体参数的选择尤为重要。图 3.2 为泵浦光波长 $1.03 \mu\text{m}$ 时 KTA-OPO 与 KTP-OPO 的 II 类相位匹配曲线:

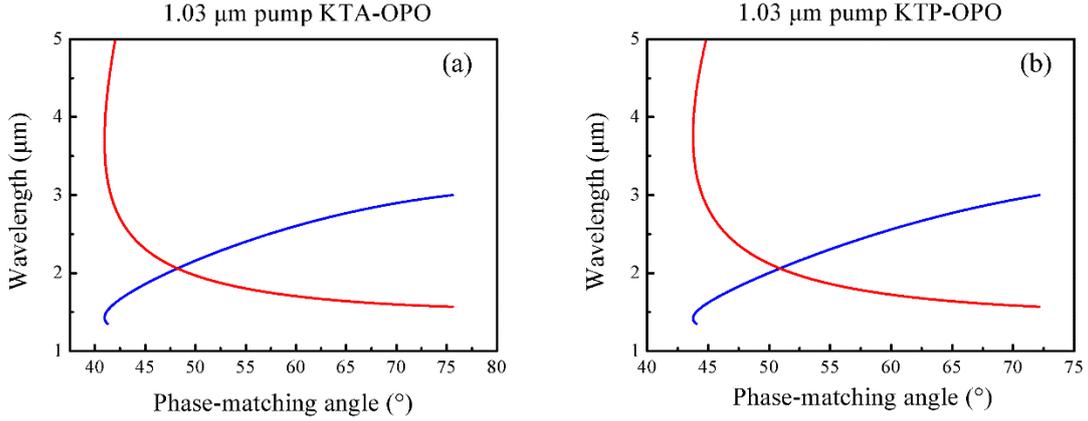


图 3.2 $1.03 \mu\text{m}$ 泵浦下的 II 类相位匹配曲线: (a) KTA-OPO; (b) KTP-OPO

Fig. 3.2 The type II phase matching curve at $1.03 \mu\text{m}$: (a) KTA-OPO; (b) KTP-OPO

从图 3.2 中可以看出, 由于 KTA 与 KTP 是双轴晶体, 在 II 类相位匹配条件下, 满足主平面 $X-Z$ 内 $o+e \rightarrow o$ 结合方式, 即泵浦光为 o 光时, 产生的信号光为 o 光, 闲频光为 e 光。当泵浦光中心波长为 $1.03 \mu\text{m}$ 时, 结合能量守恒和动量守恒条件, KTA 和 KTP 晶体的相位匹配角度分别在 40.6° – 43.8° 和 42.4° – 46.1° 之间, 对应的信号光波长范围在 1.41 – $1.71 \mu\text{m}$, 闲频光波长在 2.59 – $3.82 \mu\text{m}$ 。最后我们在实验中选择 KTA 晶体切割角度为 $\theta=41.3^\circ$, $\varphi=0^\circ$, KTP 的切割角度为 $\theta=43.7^\circ$, $\varphi=0^\circ$ 。

在满足相位匹配条件下, OPO 中参量噪声在非线性晶体中得到放大, 从而产生了信号光和闲频光。信号光在晶体中的单程增益可以表示为:

$$G_s(L) = \frac{I_s(L)}{I_s(0)} - 1 = \Gamma^2 L^2 \frac{\sinh^2\left(\sqrt{\Gamma^2 - \left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2}\right)}{\Gamma^2 L^2 - \left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad (3-3)$$

其中, L 是非线性晶体的长度, I 是信号光强度, Δk 是相位失配量, Γ 是增益因子, 可以表示为:

$$\Gamma_s = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2}{c\epsilon_0 n_p n_s \lambda_s \lambda_i} I_p(0) \quad (3-4)$$

当满足相位匹配条件时， $\Delta k=0$ ，于是公式（3-3）可以表示为：

$$G_s(L) = \sinh^2(\Gamma L) \quad (3-5)$$

在低增益条件下，公式（3-5）可以转化为：

$$G_s(L) = (\Gamma L)^2 \quad (3-6)$$

从上面公式可以看出，晶体的长度 L 是 OPO 单程增益过程中的一个重要参数，它直接影响了信号光和闲频光的转换效率。一般来说，在满足相位匹配条件的前提下，晶体长度越长，信号光和闲频光转换效率越高，但是晶体长度并不是越长越好，非线性晶体长度的选择主要受到以下条件的限制：

1. 群速度失配

对于非线性晶体，材料本身会引入色散，这就导致不同波长的光波在晶体中传播的群速度不同。对于超短脉冲激光，以 OPO 产生信号光为例，在满足相位匹配条件下，当泵浦光进入非线性晶体后会产生信号光和闲频光。泵浦光、信号光和闲频光在晶体中传播一定距离以后，由于它们的群速度各不相同，因此在时域上会产生分离，造成群速度失配（group velocity mismatch, GVM）[136-141]。群速度的定义为：

$$V_g = \frac{c}{n - \lambda \left(\frac{\partial n}{\partial \lambda} \right)} \quad (3-7)$$

其中 c 是真空中光速， n 是晶体的折射率， λ 是波长，群速度失配的定义为：

$$\Delta t = \frac{1}{\frac{1}{V_{g_i}} - \frac{1}{V_{g_j}}} \quad (3-8)$$

V_{g_i} 和 V_{g_j} 可表示泵浦光、信号光和闲频光其中任意两个光波的群速度，定义走离长度 L_w 为：

$$L_w = \frac{T_0}{\left| \frac{1}{V_{g_i}} - \frac{1}{V_{g_j}} \right|} \quad (3-9)$$

其中, T_0 为泵浦光的脉冲宽度。走离长度 L_w 表示两个脉冲在时域上走离 T_0 宽度时在晶体中所传播的距离, 它限制了脉冲在晶体中的相互作用长度, 当两个脉冲在时间上没有重叠时, 它们之间的非线性相互作用就会停止。因此走离长度是晶体长度选择的一个重要参考标准。对于 KTA 和 KTP 晶体, 在 X-Z 平面内, 满足 II 类相位匹配条件时, 通过计算可以分别得到 KTA 与 KTP 晶体的群速度失配曲线, 如图 3.3 所示。

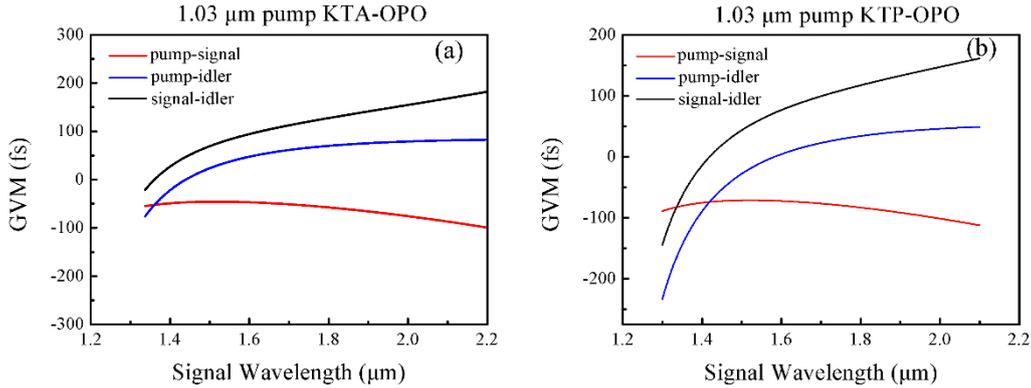


图 3.3 1.03 μm 泵浦下的群速度失配曲线: (a) KTA-OPO; (b) KTP-OPO

Fig. 3.3 Curve of group velocity mismatch at 1.03 μm: (a) KTA-OPO; (b) KTP-OPO

从图 3.3 中可以看出, 对于 KTA 晶体, 以产生信号光振荡为例, 当信号光的输出波长在 1.41 μm-1.71 μm 时, 泵浦光与信号光的 GVM 绝对值在 48.3-51 fs/mm 之间。而在 KTP 晶体中, 泵浦光与信号光的 GVM 绝对值在 74.6-77.2 fs/mm 之间。对于超短脉冲激光, 在单谐振的 OPO 中产生信号光振荡, 泵浦光与信号光之间的 GVM 决定了晶体的长度。当泵浦光的脉冲宽度为 100 fs 时, 同时假设信号光脉宽与泵浦光脉宽相当, 通过计算可以分别得到 KTA 与 KTP 晶体的走离长度, 如图 3.4 所示。从图中可以得到, KTA 与 KTP 晶体走离长度的平均值分别为 1.75 mm 和 1.25 mm, 在实际过程中, 由于晶体色散的原因, 将导致信号光脉宽展宽, 因此实际的晶体长度一般要大于走离长度, 根据实验经验, 晶体长度一般取 $1.5L_w \sim 2L_w$ 之间为宜。最终我们选取的 KTA 与 KTP 晶体的长度均为 2 mm。

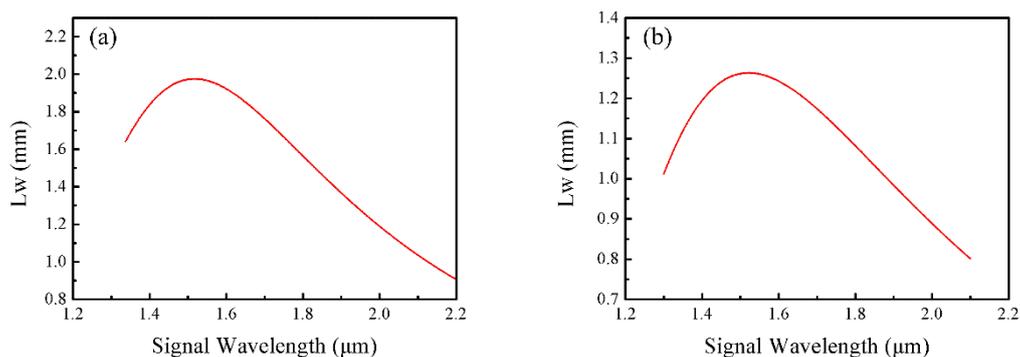


图 3.4 走离长度: (a) KTA 晶体; (b) KTP 晶体

Fig. 3.4 Curve of walk off length: (a) KTA crystal; (b) KTP crystal

2. 群速度色散

对于超短脉冲激光, 非线性晶体会对激光脉冲引入一定的色散, 除了引起 GVM 以外, 群速度色散 (group velocity dispersion, GVD) 也是一个重要的时域参数[142], GVD 的大小决定了脉冲经过晶体后的脉宽展宽程度, 同时也决定了需要补偿的色散量。GVD 的定义为群速度 V_g 对波长 λ 的一阶导数

$$GVD = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \quad (3-10)$$

如果考虑到晶体的长度, 定义 group delay dispersion (GDD) 为群延迟色散

$$GDD = d \cdot GVD \quad (3-11)$$

其中 d 为光波在晶体中传播的距离。当激光脉冲经过非线性晶体后, 其脉宽将得到展宽, 定义展宽量为 $\tau_p(d)$ 为:

$$\tau_p(d) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{d}{z_d}\right)^2} \quad (3-12)$$

$$z_d = \frac{1}{4 \ln 2} \frac{\tau_0^2}{GVD} \quad (3-13)$$

式中 τ_0 为高斯型脉冲的初始脉冲宽度。在 OPO 中, 信号光的 GDD 是一个重要的参数, 它决定了谐振腔运转的色散区域。信号光的 GDD 比较大, 那么输出脉冲会带有明显的啁啾从而导致脉宽展宽。如果泵浦光的脉宽较短, GDD 对脉冲的展宽作用越明显。本实验中的非线性晶体 KTA 与 KTP, 其提供的 GDD 均为正值, 当输出信号光波段为 1.41-1.71 μm 时, 2 mm KTA 与 KTP 晶体的信号光

平均 GDD 分别为 128 fs^2 和 82 fs^2 ，另外谐振腔中的普通介质膜也会引入一定的正色散，因此为了得到脉冲宽度较短的信号光输出，必须在腔内进行色散补偿。

3. 空间走离

对于双折射的非线性光学晶体， o 光传播的波矢方向与光能流方向一致，而对于 e 光，通常情况下波矢方向与光能流方向不一致（光波在晶体中的传播方向与光轴的夹角不等于 0° 或 90° ）。这样就会导致 o 光和 e 光在非线性晶体传播过程中逐渐分离，二者之间的夹角称为走离角。如图 3.5 所示，泵浦光进入非线性晶体后，会沿着 OA 方向传播，信号光的传播方向同样是 OA 方向，但是其波矢方向是沿着 $n_i(\theta)$ 曲线在 A 点的法线方向 $-\alpha$ 方向传播，其中 α 称走离角。

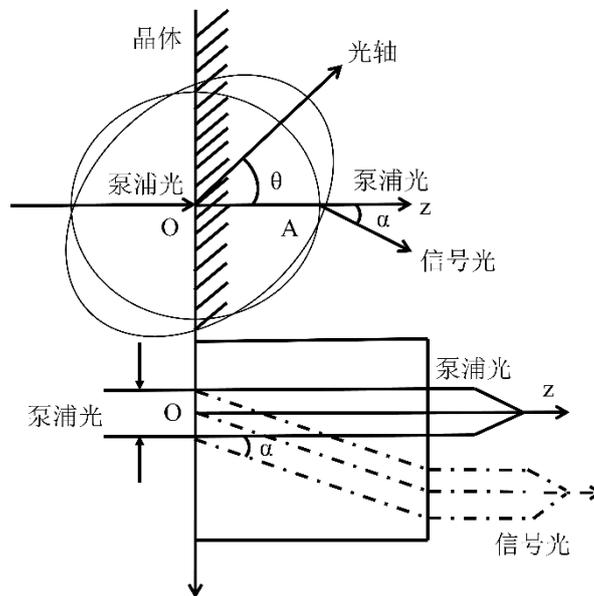


图 3.5 晶体空间走离示意图

Fig. 3.5 Schematic diagram of walk off in crystal

空间走离效应使得泵浦光在非线性晶体内产生的信号光偏离泵浦光 α 角，同时当信号光从晶体表面出射时，其光斑大小被拉长了。假设泵浦光的光场分布是高斯型，那么信号光的光场强度分布只能是准高斯分布，空间走离效应使得信号光的功率密度降低，这是因为走离效应使得晶体各部分产生的信号光相干叠加的长度缩短了。第二章中曾经提到，采用非共线相位匹配的方式虽然可以有效的避免空间走离效应，同时容易将泵浦光和信号光分离，但是非共线的缺点在于光路调节起来比较困难，对于实现信号光波长宽带可调谐造成了一定困难。因此，非共线相位匹配通常在 OPA 中采用，本实验所采取的方案是共线相位匹配。

4. 参量带宽

对于 OPO 过程，参量带宽对于有效的非线性频率变换来讲同样是一个重要的参数。参量带宽的定义为

$$\Delta k \cdot l_c \in (-\pi, \pi) \quad (3-14)$$

其中 l_c 为晶体的长度，对于非线性晶体而言，材料色散决定了光谱带宽和泵浦光接受带宽，当晶体长度为 l_c 时，泵浦光接收带宽可以表示为

$$\Delta \lambda_p l_c = \lambda_p^2 [n_p - n_i + \lambda_i \left(\frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i} \right) - \lambda_p \left(\frac{\partial n_p}{\partial \lambda_p} \right)]^{-1} \quad (3-15)$$

公式 (3-15) 表明，当晶体长度固定不变时，带宽 $\Delta \lambda_p$ 内的泵浦光有效的转变为信号光和闲频光。此时对应的信号光带宽为

$$\Delta \lambda_s l_c = \lambda_s^2 [n_i - n_s + \lambda_s \left(\frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} \right) - \lambda_i \left(\frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i} \right)]^{-1} \quad (3-16)$$

从上式可以看出，信号光的参量带宽由泵浦光带宽和发散特性决定，其本质是和晶体材料的色散特性紧密相连。

5. 品质因子

OPO 过程中非线性晶体的选择，除了要考虑晶体本身的材料色散引起的 GVM、GDD、参量带宽和空间走离效应以外，还需要考虑它们的透光范围，损伤阈值、晶体尺寸等。通常采用品质因子 FOM (figure of merit) 来描述非线性晶体的总体功效：

$$FOM = \frac{d_{eff}}{\sqrt{n_s n_p n_i}} \quad (3-17)$$

对于特定的光谱范围，可以利用 FOM 来比较不同非线性晶体的整体性能。

除了上面所讲的几个影响因素以外，泵浦源的平均输出功率、发散角、光束质量和功率稳定性等都会对 OPO 系统产生影响。本实验中，采用的泵浦源为商业的激光器，性能可靠稳定，因此对这些影响因素不在赘述。

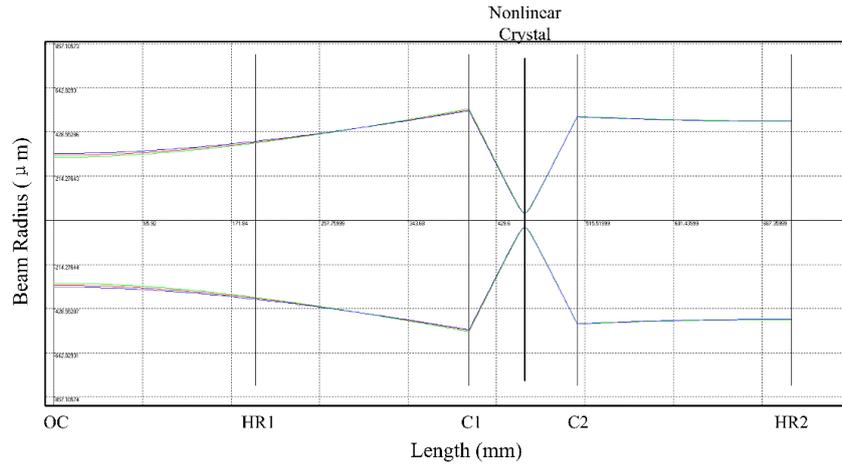


图 3.6 OPO 振荡器腔内模式分布

Fig. 3.6 Cavity distribution of OPO

OPO 主要由谐振腔与非线性晶体组成，非线性晶体负责信号光的产生，而谐振腔对产生的信号光提供反馈。根据之前的介绍，OPO 腔型结构主要分为线形腔和环形腔，两种腔型各具特点。本实验所采用的腔型结构为线形腔，利用 Matrix Laser 软件，可以模拟谐振腔内的模式分布，如图 3.6 所示。从图中可以看出，为了得到高功率的信号光，谐振腔的结构为共焦腔，让非线性晶体处于 C1 和 C2 两个凹面镜的焦点处。通过在非线性晶体中合理的匹配聚焦后的泵浦光和信号光光斑大小，就可以实现高平均功率、高转换效率的信号光输出。

在飞秒 OPO 中，信号光能实现振荡的条件是 OPO 的腔长要与泵浦光的腔长相匹配，即 OPO 的腔长与泵浦光的腔长相同或成整数倍，

$$L_p = L_{OPO} \cdot N \quad (N \text{ 为整数}) \quad (3-18)$$

其中 L_p 为泵浦源的腔长， L_{OPO} 为 OPO 的腔长。当 OPO 的腔长为泵浦源腔长的 $1/N$ 时，其对应的重复频率为泵浦源的 N 倍。本实验为了获得高重频的近红外-中红外飞秒激光，采用谐频泵浦的方式。

3.1.3 近红外-中红外飞秒 KTA-OPO 实验研究

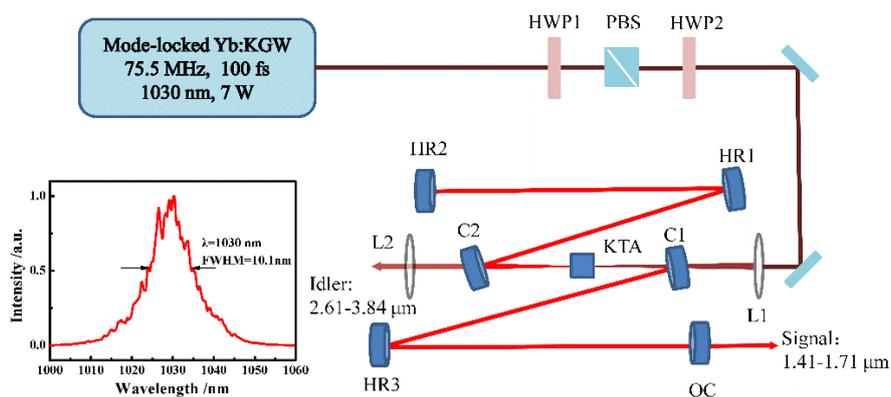


图 3.7 飞秒 KTA-OPO 实验装置

Fig. 3.7 Schematic of the experimental setup for KTA femtosecond OPO

利用上一节的理论模拟结果，我们进行了高功率、高重频飞秒 KTA-OPO 的实验研究。实验装置如图 3.7 所示，泵浦源为立陶宛 Light Conversion 公司的商用 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器，其输出平均功率为 7 W，中心波长 1.03 μm ，脉冲宽度接近 100 fs，重复频率 75.5 MHz，光束质量 M^2 因子 <1.2 。该振荡器内包含电路锁定系统，长时间的功率抖动 $\text{RMS} < 0.1\%$ 。半波片（HWP1）和偏振棱镜（PBS）组成一个功率衰减器，用来改变泵浦光的功率。另一个半波片（HWP2）用来调整泵浦光的偏振方向。L₁ 是焦距 $f=100$ mm 的聚焦透镜，将泵浦光聚焦到 KTA 晶体上。OPO 腔型为简单的线形腔，其中 C1 和 C2 为凹面镜，焦距 $f=100$ mm，它们镀有对 1.03 μm 高透（ $T > 99\%$ ），1.23-1.72 μm 高反（ $\text{HR} > 99\%$ ）的介质膜，同时 C2 还镀有对 2.2-4.4 μm 高透（ $T > 95\%$ ）的介质膜。HR1、HR2 和 HR3 为高反镜，它们对 1.23-1.72 μm 高反（ $R > 99\%$ ）。对于输出镜 OC，在 1.23-1.72 μm 波段的透过率为 1%，将其放置在一个精密的一维平移台上，用来调整 OPO 腔长，实现腔长匹配。实验中采用的 KTA 晶体切割角度为 $\theta=41.3^\circ$ ， $\varphi=0^\circ$ ；满足 II 类相位匹配条件（ $o+e \rightarrow o$ ），晶体尺寸为 $4 \times 4 \times 2$ mm，双面镀有对 1.03 μm 和 1.3-1.75 μm 波段的增透膜。同时为了将闲频光从泵浦光中分离并进行准直，在 C2 凹面镜后放置了一个锩片 L2，其焦距 $f=100$ mm，对 3-5 μm 波段具有较高的透过率（ $T > 95\%$ ）。OPO 的腔长为 993 mm，其对应的重复频率为 151 MHz，重复频率为泵浦源的 2 倍。

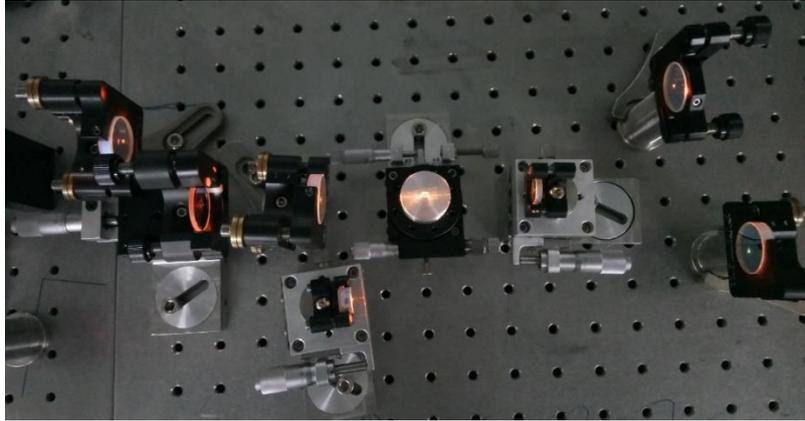


图 3.8 KTA-OPO 运行实拍

Fig. 3.8 Real picture of KTA-OPO

按照图 3.7 所示的实验装置，当 OPO 的腔长与泵浦源的腔长相匹配时，可以实现信号光在谐振腔内的振荡，其实际运行效果如图 3.8 所示。通过仔细优化，在 7 W 的泵浦光功率下，最终得到的信号光最大输出功率为 2.32 W，中心波长在 1.55 μm ，同时得到的闲频光最大输出功率为 1.31 W，中心波长在 3.05 μm ，整体转换效率为 51.8%。随后通过旋转 HWP1 来改变泵浦光功率直到低于 OPO 泵浦阈值，可以获得不同泵浦光功率下的信号光和闲频光输出功率，如图 3.9 所示。可以看出，信号光和闲频光的输出功率随着泵浦光功率的增加而呈线性增长趋势。尽管泵浦光的光束质量很好，峰值功率很高，但是 OPO 实现稳定运转的泵浦功率阈值在 3.11 W。这是因为泵浦光的脉宽比较窄，对应的光谱带宽比较宽，激光脉冲所包含的能量被分配到整个光谱覆盖范围，因此需要较高的能量使得整个光谱内的成分都得到增益，因此泵浦功率阈值会比较高。

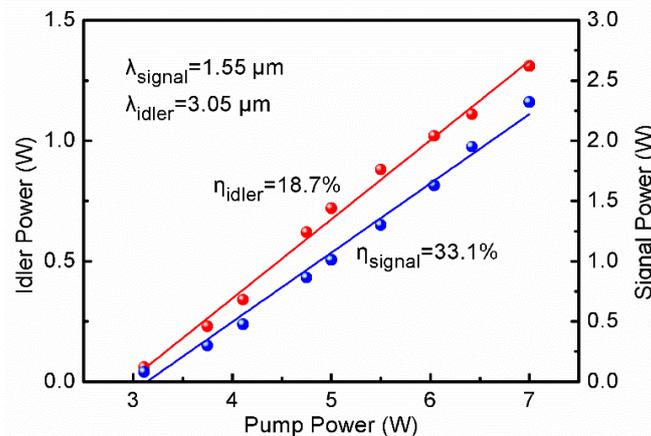


图 3.9 不同泵浦功率下的信号光 (1.55 μm) 和闲频光 (3.05 μm) 输出功率

Fig. 3.9 Variation of the signal (1.55 μm) and idler (3.05 μm) output powers extracted from the KTA OPO as a function of the pump power.

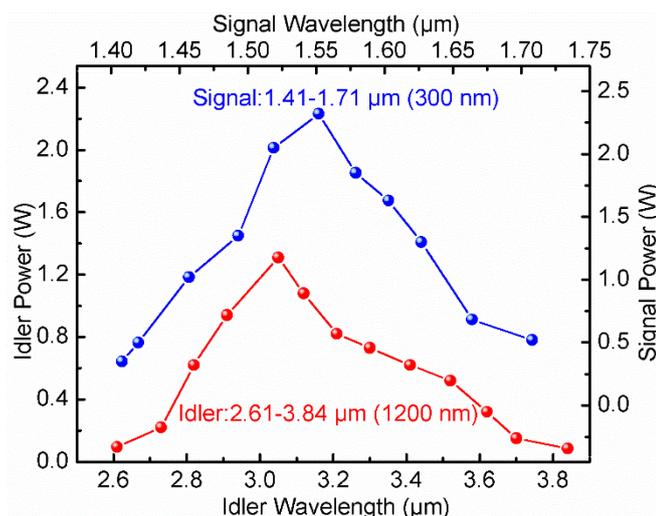


图 3.10 信号光和闲频光功率随波长的变化曲线

Fig. 3.10 Extracted signal and idler output powers across the tuning range of the KTA OPO at a fixed pump power.

通过改变 KTA 晶体角度，同时优化腔长，最终得到了波长在 1.41-1.71 μm 范围内连续可调谐的信号光输出，对应的闲频光波长光谱范围在 2.61-3.84 μm 。图 3.10 描述了信号光和闲频光的输出功率随波长的变化曲线，当泵浦光功率固定在 7 W 时，信号光在整个调谐范围内的输出功率高于 450 mW，与之对应的闲频光功率在 2.8-3.5 μm 范围内整体高于 400 mW。尽管 KTA 晶体的透光范围在 0.35-5.3 μm ，但是在 3.5-5.3 μm 波段内，KTA 晶体对闲频光的吸收相比其他波段比较强烈，这使得 3.5 μm 以上的中红外波段功率比较低。同时，由于锗片透过波段的限制，导致了 3 μm 以下的波段平均功率比较低。

利用商用光谱仪（Yokogawa, AQ6370C），我们测量了信号光的输出光谱，通过改变 KTA 晶体的相位匹配角度和调整腔长，最终实现了波长在 1.41-1.71 μm 范围内连续可调谐的信号光输出，如图 3.11 所示。KTA-OPO 腔长的容忍量在 20 μm ，在不改变相位匹配角的条件下，信号光的波长变化量在 60 nm。信号光波长的调谐范围受到以下因素的影响：（1）当泵浦光的中心波长为 1.03 μm 时，受到 KTA 晶体相位匹配条件和光谱透过范围的限制，理论上的最短信号光波长约为 1.34 μm ，接近 1.41 μm ；（2）实验中镜片的镀膜范围最多到 1.72 μm ，限制了信号光的长波输出范围。根据上述条件的限制，最终获得的信号光的调谐范围在 1.41-1.71 μm 。为了表征信号光长时间的稳定性，我们测量了最大功率时的信号光功率稳定性，当信号光输出功率为 2.32 W 时（中心波长 1.55 μm ），1 小时内

功率抖动 RMS 值为 1.6%。本实验中，OPO 运行并没有处于封闭的环境中，造成信号光功率不稳定的因素有空气扰动，机械件振动以及腔长漂移等。通过引入电路锁定和腔长反馈装置，可以提高输出信号光功率的稳定性。

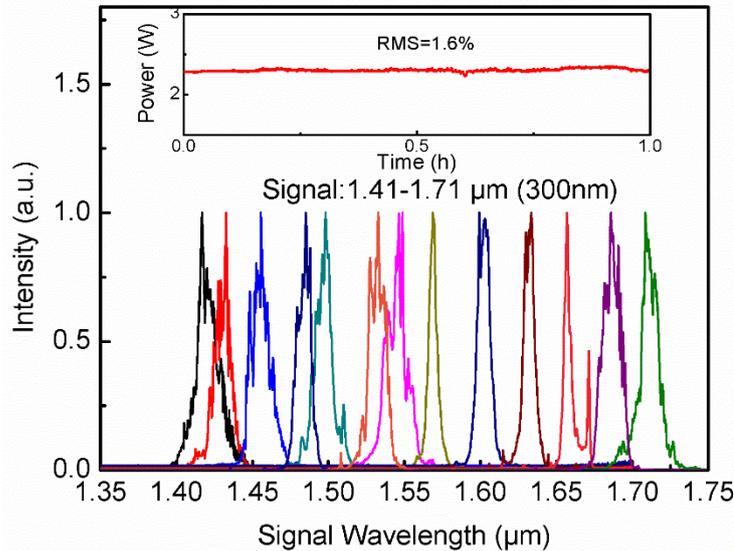


图 3.11 KTA-OPO 信号光光谱和功率稳定性 (1 小时)

Fig. 3.11 Normalized signal spectra across the tuning range of the femtosecond KTA OPO.

Inset: long-term power stability for 1 h at the central wavelength of 1.55 μm.

接下来测量了信号光的脉宽，通过计算可以得出，2 mm 的 KTA 晶体引入 GDD 的平均值为 128 fs^2 ，OPO 的整个腔长为 993 mm，空气引入的 GDD 约为 20 fs^2 ，考虑到镜片的介质膜还会引入正的 GDD，为了得到接近傅里叶极限变换脉宽的激光脉冲，我们在腔内使用了啁啾镜用来补偿色散，其中，C1 和 C2 在 1.44-1.72 μm 之间的 GDD 平均值为 -100 fs^2 。利用商用强度自相关仪 (PulseCheck-50, A. P. E. GmbH)，我们测量了信号光的脉宽。如图 3.12 所示，当信号光中心波长为 1.52 μm 时，得到的脉宽最短，为 129 fs。同时利用光谱仪测量了此时的信号光光谱，光谱半高全宽为 21.7 nm，对应的傅里叶极限变换脉宽为 114 fs。而实验中测量得到的光谱和脉宽的时间带宽积 $\Delta\tau\Delta\nu=0.36$ ，这说明产生的信号光脉宽已经接近傅里叶极限变换脉宽。在整个信号光波长调谐范围内，信号光脉宽在 129-200 fs 之间，时间带宽积为 0.36-0.6，信号光脉宽展宽是由泵浦光和信号光在 KTA 晶体中的 GVM 造成的。

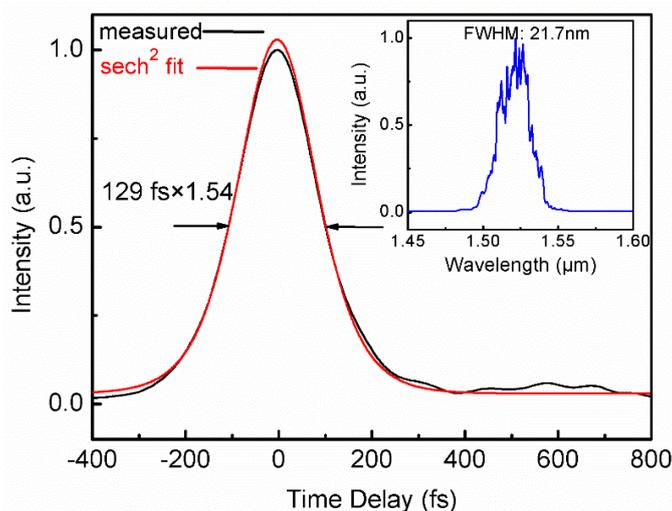


图 3.12 强度自相关曲线和对应的光谱曲线

Fig. 3.12 Typical intensity autocorrelation trace of the OPO signal pulses at 1.52 μm with a duration of 129 fs ($\times 1.543$, assuming a sech^2 pulse shape).

Inset: the corresponding optical spectrum.

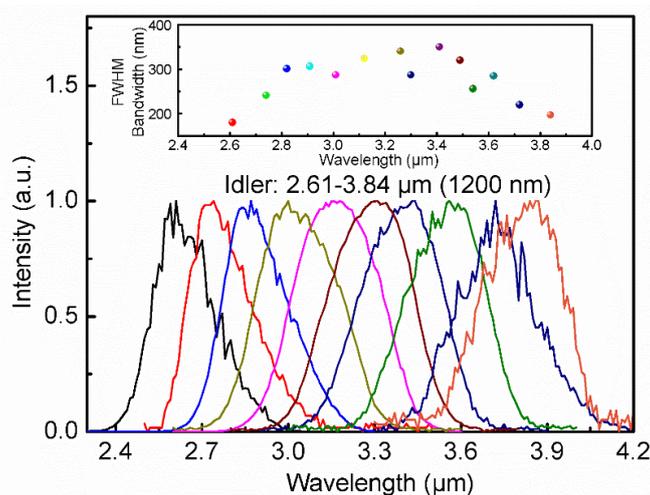


图 3.13 KTA-OPO 闲频光光谱

Fig. 3.13 Typical normalized idler spectra across the KTA OPO tuning range. Inset: the corresponding FWHMs of the idler spectra as a function of the wavelength.

随后研究了闲频光的输出特性，使用焦距 $f=100$ 的锗片将闲频光从泵浦光中分离并且准直。利用商用单色仪 (Omni- λ 150, Zolix Instruments Ltd)，HgCdTeZn 中红外探测器 (Vigo System)，光学斩波器和锁相环放大器 (SR830 Stanford Research Systems)，我们测量了闲频光的光谱。如图 3.13 所示，闲频光的波长调谐范围在 2.61-3.84 μm 之间，整个波长调谐范围内的光谱带宽超过了 180 nm，在中心波长 3.41 μm 处的带宽最大，为 340 nm。尽管闲频光单次通过 KTA 晶体，但是当闲频光功率较低时，其光谱还是出现了比较明显的调制。这是因为闲频光

在到达 HgCdTeZn 中红外探测器前，在空气中经过了一段较长的距离，功率会有所下降，导致光谱出现调制。同时测量了闲频光的功率稳定性，1 小时内的功率抖动 RMS 值为 1.5%，相对稳定。相比于级联晶体方式，这种单次通过产生中红外飞秒激光脉冲的方法操作简单，节约成本，同时可以维持长时间稳定的运转。

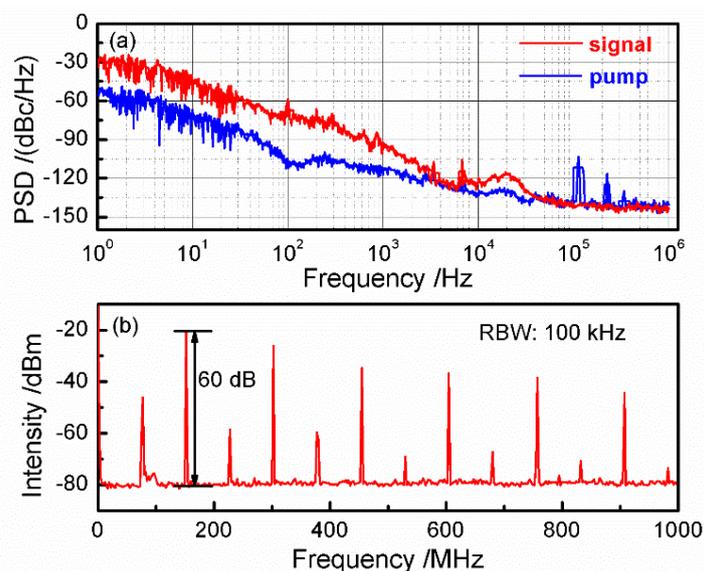


图 3.14 KTA-OPO 信号光重复频率的相位噪声(a)和频谱序列(b)

Fig.3.14 (a) Phase noise PSD of signal (red) and pump (blue) from 1 Hz to 1 MHz; (b) typical radio-frequency spectrum from 0 Hz to 1 GHz with 100 kHz resolution.

最后我们用商用频谱仪 (Agilent E4402B) 对信号光脉冲进行了分析。如图 3.14 (a) 所示，蓝线和红线分别表示在 1 Hz-1 MHz 内，泵浦光和信号光重复频率的相位噪声。当信号光输出功率最大时，在 1 Hz-5 kHz 范围内信号光的相位噪声比泵浦源要高，这部分相位噪声主要是由周围环境扰动、腔长漂移等引起的。而在 100 kHz-1 MHz 范围内，信号光和泵浦光的相位噪声都比较低，最低时为 143 dB/Hz。在整个范围内，信号光重频的相位噪声都比较低，这是由于全固态泵浦源不易受到环境影响所致。图 3.14 (b) 给出了信号光为 151 MHz 的频谱序列，其分辨率为 100 kHz。可以看出，在 151 MHz 时其信噪比为 60 dB，并且在 0-1 GHz 范围内，其各阶高次谐波信号并没有出现明显的边带，这说明信号光处于比较稳定的运行状态，同时也说明 OPO 腔长和泵浦光腔长匹配的比较精确。

另外在实验中，除了 OPO 产生的信号光和闲频光之外，还观测到了其他光谱成分，如图 3.15 所示。KTA-OPO 在产生近红外-中红外飞秒激光同时，还产生

了可见光。OPO 最初实现信号光运转时，得到了中心波长为 777 nm 和 619 nm 的红光，产生原因是 KTA 晶体在满足产生信号光相位匹配条件同时，也满足了信号光与泵浦光，闲频光与泵浦光的和频相位匹配条件，即 $1030\text{ nm}+3050\text{ nm} \rightarrow 770\text{ nm}$ ， $1030\text{ nm}+1551\text{ nm} \rightarrow 619\text{ nm}$ 。值得注意的是，这些可见光伴随着信号光同时出现，红光的出现可以通过肉眼来判断，这为 OPO 产生信号光振荡提供了一个简单的判据。

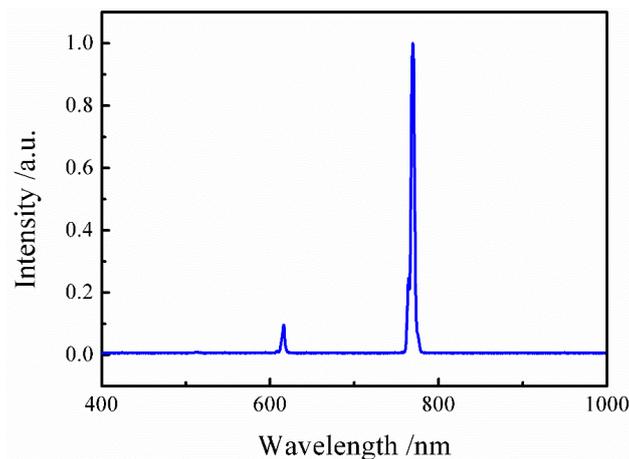


图 3.15 可见光光谱

Fig. 3.15 Spectrum of visible laser

3.1.4 近红外-中红外飞秒 KTP-OPO 实验研究

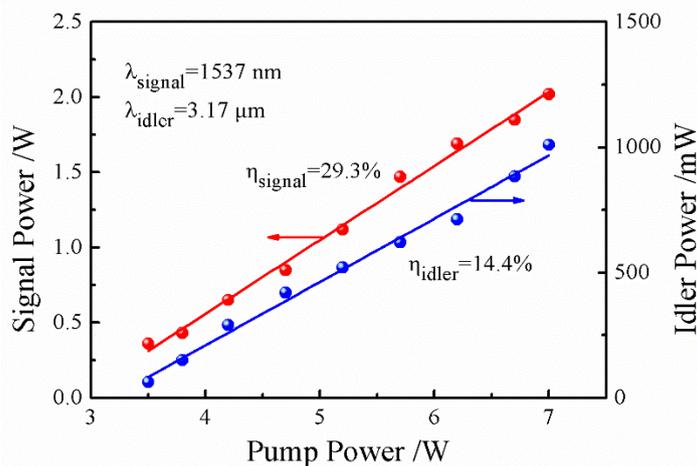


图 3.15 不同泵浦功率下的信号光和闲频光输出功率

Fig. 3.16 Variation of the signal (1.53 μm) and idler (3.17 μm) output powers extracted from the KTA OPO as a function of the pump power.

利用相同结构的 OPO 腔型，将 2-mm 的 KTA 晶体换成 2 mm 的 KTP 晶体，通过腔长匹配可以实现信号光振荡。当泵浦功率为 7 W 时，得到的信号光最大

输出功率为 2.05 W, 中心波长在 1.53 μm , 同时得到的闲频光最大功率为 1.01 W, 中心波长在 3.17 μm , 整体转换效率为 43.7%。如图 3.15 所示, 实现信号光振荡的泵浦功率阈值为 3.5 W, 相比于 KTA 晶体, KTP 晶体在 3-4.5 μm 波段的透过率要低, 导致了泵浦功率阈值的上升。图 3.17 描述了 KTP-OPO 信号光和闲频光功率随波长的变化曲线, 信号光在整个调节范围内的功率超过了 180 mW, 而闲频光最大功率为 1.01 W (3.17 μm), 最小功率为 75 mW (3.84 μm)。

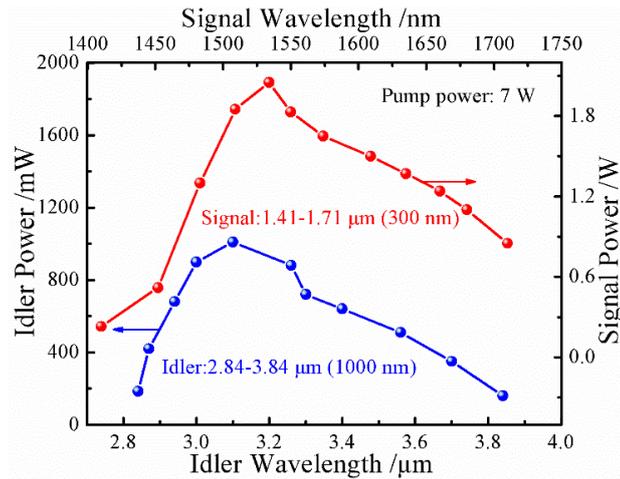


图 3.17 信号光和闲频光功率随波长的变化

Fig. 3.17 Extracted signal and idler output powers across the tuning range of the KTP OPO at a fixed pump power.

通过改变 KTP 晶体的相位匹配角, 调谐腔长, 最终得到的信号光的调谐范围同样在 1.41-1.71 μm 之间, 如图 3.18 所示, 在最大功率 2.05 W 处测量了信号光的功率稳定性, 1 小时内的功率抖动 RMS 值为 1.5%。

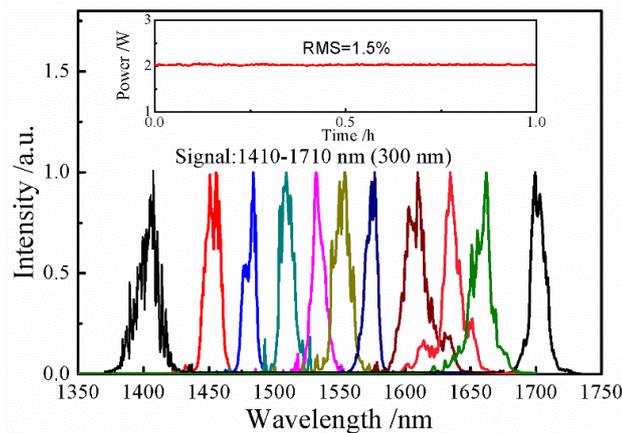


图 3.18 KTP-OPO 信号光光谱和功率稳定性

Fig. 3.18 Normalized signal spectra across the tuning range of the femtosecond KTA OPO.

Inset: long-term power stability for 1 h at the central wavelength of 1.55 μm

利用商用自相关仪测量了信号光脉宽，如图 3.19 所示，当信号光中心波长为 $1.6 \mu\text{m}$ 时，测量得到的最短脉宽为 200 fs，此时对应的光谱带宽为 15.4 nm，光谱支持的傅里叶极限变换脉宽为 174 fs，这表明得到的信号光脉冲还存在一定的啁啾，色散并没有得到完全补偿。在整个信号光光谱调节范围内，脉冲宽度在 200 fs-380 fs 之间，与 KTA 晶体相比，信号光的脉冲展宽比较明显。

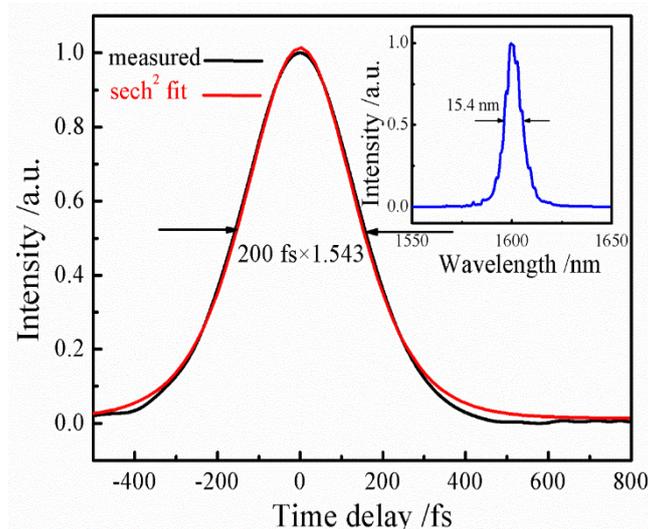


图 3.19 强度自相关曲线和对应的信号光光谱

Fig. 3.19 Typical intensity autocorrelation trace of the OPO signal pulses at $1.6 \mu\text{m}$ with a duration of 200 fs ($\times 1.543$, assuming asech^2 pulse shape).

Inset: the corresponding optical spectrum.

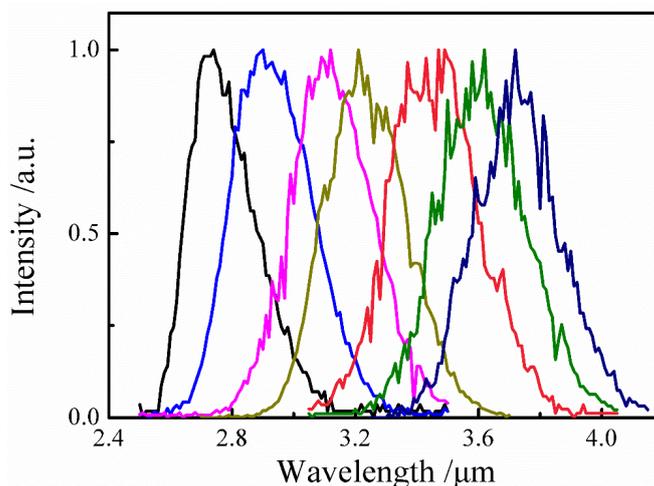


图 3.20 KTP-OPO 闲频光光谱

Fig. 3.20 Typical normalized idler spectra across the KTA OPO tuning range.

接下来测量了闲频光的光谱，闲频光的调谐范围在 $2.84\text{-}3.84 \mu\text{m}$ 之间，如图 3.20 所示。从图中可以看出，KTP-OPO 闲频光的光谱调制要严重的多，这是因

为闲频光功率整体较低，导致 HgCdTeZn 探测器接受到的功率较低，最终得到的光谱不是很平坦。

最后我们将 KTA-OPO 与 KTP-OPO 进行了对比，如下表所示：

表3.1 KTA-OPO和KTP-OPO输出特性

	KTA-OPO	KTP-OPO
信号光调谐范围	1.41-1.71 μm	1.41-1.71 μm
闲频光调谐范围	2.61-3.84 μm	2.84-3.84 μm
信号光最大功率	2.32W @1.55 μm	2.05 W @1.53 μm
闲频光最大功率	1.31 W@3.05 μm	1.01 W@3.17 μm
转换效率	51.8%	43.7%
最短信号光脉宽	129 fs	200 fs
信号光功率稳定性	RMS=1.6%	RMS=1.5%
闲频光功率稳定性	RMS=1.5%	RMS=1.5%

通过对比可以发现，KTA-OPO 的输出特性整体上占有优势，其信号光和闲频光功率，以及转换效率都比较高。尽管 KTA 晶体的 GVD 较大，但是通过在腔内进行合理的色散补偿，最终可以实现超短脉冲激光的输出。接下来将利用 KTA-OPO 产生的高功率中红外激光进行固体高次谐波，白光超连续产生的实验。

3.2 高重频宽带可调谐飞秒 OPO

高重频超短脉冲激光光源，在时间分辨光谱学、泵浦探测、光学频率梳等领域有着强烈的应用需求。波长范围在 1.3-1.55 μm 的高重频飞秒激光由于具有较高的数据传输速率和大容量，被广泛的应用于光通信领域。紫外波段的高重频飞秒激光在研究原子分子物理、光子生物学、激光精细加工等领域有着巨大的潜力。由于 OPO 的调谐特性，其输出波长可以从紫外覆盖到中红外波段，高重频的飞秒 OPO 已经广泛应用于光学频率梳领域。光学频率梳作为一种超精细的测量工具，其核心组成部分飞秒激光器需要具备较高的重复频率。高重复频率的脉冲激光作为频梳标准时，由于其纵模间隔较大，能够比较容易的利用商用波长计分辨出所要测量的光频的具体梳齿范围。因此，光学频率梳的重复频率越高，其应用于光频测量实验时，对波长计分辨率的要求就越低。起初，人们利用 Ti:sapphire 激光器泵浦 OPO 来获得高重频的飞秒激光，然而受到 Ti:sapphire 激光器平均功

率的限制，飞秒 OPO 的重复频率仅有 1 GHz 左右。近些年来，随着掺 Yb³⁺ 的光纤放大器和全固态振荡器的蓬勃发展，在满足高功率的同时还兼顾了其他优良性能，使其有望成为潜在的超短脉冲光源。本实验采用 515 nm 的飞秒绿光作为泵浦源，结合 BIBO 晶体，分别研究了重复频率为 75.5 MHz、151 MHz 和 755 MHz 时，飞秒 OPO 的输出特性，最后利用 BBO 作为倍频晶体，得到了高重频宽带可调谐的紫外飞秒激光。

3.2.1 BIBO、BBO 和 LBO 简介

1. BIBO 晶体

BIBO (硼酸铋, BiB_3O_6) 是一种新开发的非线性光学晶体，它具有较大的有效非线性系数，高损伤阈值以及优良的物化性能，是用于可见光-近红外波段最优良的非线性晶体之一。其主要性质如下[134-135,143]:

透光波段: 286-2500 nm;

损伤阈值: $>5 \text{ GW/cm}^2$ (350 ps @1064 nm) ;

有效非线性系数: $d_{\text{eff}}=3.2 \text{ pm/V}$;

密度: 5.033 g/cm^3 ;

吸收系数: $<0.1\%/ \text{cm}$ @ 1064 nm;

BIBO 为负双轴晶体，设主轴为 x 、 y 、 z ，($n_x > n_y > n_z$)，各主轴折射率的 Sellmeier 方程如下:

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 3.0722 + 0.0324 / (\lambda^2 - 0.0315) - 0.0133\lambda^2 \\ n_y^2 &= 3.1669 + 0.0372 / (\lambda^2 - 0.0348) - 0.0175\lambda^2 \\ n_z^2 &= 3.6525 + 0.0511 / (\lambda^2 - 0.0370) - 0.0226\lambda^2 \end{aligned} \quad (3-19)$$

BIBO 晶体的最大优势在于它的有效非线性系数比较高，是 BBO 晶体的 1.5-2 倍，是 LBO 晶体的 3.5-4 倍。BIBO 晶体广泛的应用于可见光-近红外波段。

2. BBO 晶体

BBO (偏硼酸钡, $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$) 是中科院福建物构所于 1984 年首次发现和研制的新型紫外倍频晶体。该晶体综合性能优良，透明范围较大，非线性系数大、倍频转换效率高，损伤阈值能力强。BBO 晶体的光学特性如下[134-135]:

透光波段: 189-3500 nm;

损伤阈值: 10 GW/cm^2 (100 ps @ 1064 nm) ;

非线性系数: $d_{11}=5.8 \times d_{36}(\text{KDP})$, $d_{31}=0.05 \times d_{11}$, $d_{22} < 0.05 \times d_{11}$;

电光系数: $r_{11}=2.7 \text{ pm/V}$, r_{22} , $r_{31} < 0.1 r_{11}$;

密度: 3.82 g/cm^3 ;

比热: $1.91 \text{ J/(cm}^3\text{K)}$;

吸收系数: $< 0.1\%/\text{cm}$ @ 1064 nm

I类相位匹配条件下的有效非线性系数:

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

II类相位匹配条件下的有效非线性系数:

$$d_{\text{eff}} \approx (d_{11} \cos 3\varphi + d_{22} \sin 3\varphi) \cos 2\theta$$

BBO 为负单轴晶体, 其双折射率 n_e 、 n_o 和波长 λ 之间满足以下关系:

$$\begin{aligned} n_o^2 &= 2.7359 + 0.01878 / (\lambda^2 - 0.01822) - 0.01354 \lambda^2 \\ n_e^2 &= 2.3753 + 0.01224 / (\lambda^2 - 0.01667) - 0.01516 \lambda^2 \end{aligned} \quad (3-20)$$

BBO 晶体以其优良的性能已广泛应用于全固态可调谐激光器, 超短脉冲激光领域, 紫外、深紫外激光的产生, 参量振荡和参量放大等非线性光学技术领域。

3. LBO 晶体

LBO (三硼酸锂, LiB_3O_5) 是中科院福建物构所根据阴离子集团理论, 发明和研制的另一种新型非线性晶体。LBO 晶体的透光范围大, 损伤阈值高, 接受角和相位匹配范围大, 目前已广泛应用于倍频、和频、参量振荡和参量放大等非线性技术中。LBO 晶体的主要光学特性如下[134-135,144]:

透光波段: 160-3200 nm;

损伤阈值: 18.9 GW/cm^2 (1.3 ns @ 1064 nm) ;

非线性系数: $d_{31}=1.05 \pm 0.09 \text{ pm/V}$, $d_{32}=-0.98 \pm 0.09 \text{ pm/V}$,

$$d_{23}=0.05 \pm 0.006 \text{ pm/V};$$

密度: 2.47 g/cm^3 ;

吸收系数: $< 0.035\%/\text{cm}$ @ 1064 nm

LBO 为负双轴晶体, 设主轴为 x 、 y 、 z , ($n_x > n_y > n_z$), 各主轴折射率的 Sellmeier 方程如下:

$$n_x^2 = 2.4542 + 0.01125 / (\lambda^2 - 0.01135) - 0.01388 \lambda^2 \quad (3-21)$$

$$n_y^2 = 2.5390 + 0.01277 / (\lambda^2 - 0.01189) - 0.01849\lambda^2 + 4.3025 \times 10^{-5} \lambda^4 - 2.9131 \times 10^{-5} \lambda^6$$

$$n_z^2 = 2.5865 + 0.01310 / (\lambda^2 - 0.01223) - 0.01862\lambda^2 + 4.5778 \times 10^{-5} \lambda^4 - 3.2526 \times 10^{-5} \lambda^6$$

LBO 晶体相比于其他无机非线性光学晶体，其最明显的优势在于自身具有很大的损伤阈值，这使该晶体可用于大能量、高功率的频率变换过程。其次 LBO 的透光范围较大，一直延伸到真空紫外区域，有效 $\chi^{(2)}$ 非线性系数大，倍频转换效率高，机械性能好。LBO 晶体的这些突出优点可使其广泛用于非线性频率变换技术领域。

3.2.2 高功率 515 nm 飞秒激光产生

实验中所采用的泵浦源为上一节所提到的商用 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器，为了产生高功率、窄脉宽的 515 nm 飞秒激光，需利用倍频的方式将中心波长为 1030 nm 的近红外激光频率变换到 515 nm。倍频晶体的选择需要满足以下几个特点：（1）较大的有效非线性系数；（2）高损伤阈值；（3）GVM 和 GDD 较小；（4）空间走离效应较小。相比于 BBO 和 BIBO，LBO 晶体的激光损伤阈值最高，并且具有较大的相位匹配允许角，同时具有较小的 GVM 和 GDD，虽然 LBO 晶体的有效非线性系数较低，但是可以通过增加晶体长度来弥补。飞秒绿光的光束特性直接影响到后续的高重频飞秒 OPO 实验结果，为了得到高功率、光束质量好、脉宽较短的 515 nm 飞秒绿光，最终选择 LBO 作为倍频晶体。

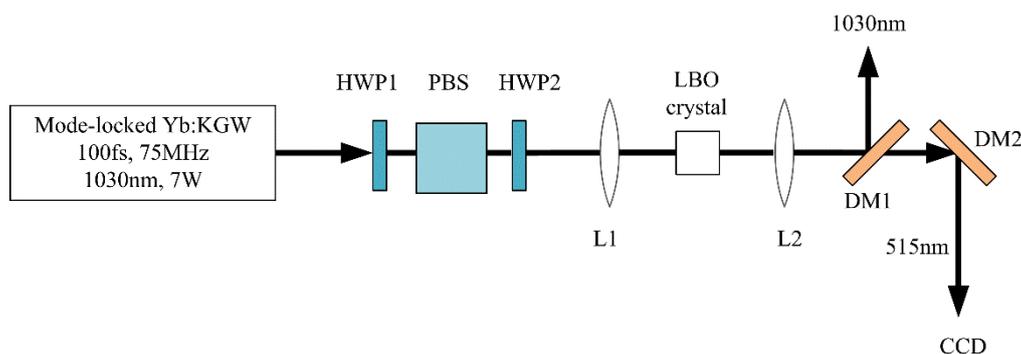


图 3.21 高功率 515 nm 飞秒激光产生装置

Fig. 3.21 The experimental setup of high power 515 nm green laser

图 3.21 展示了高功率飞秒绿光产生装置，其中 HWP1 和 PBS 用来调节泵浦光功率，HWP2 用来调整基频光的偏振方向，使其偏振状态满足 LBO 晶体的相位匹配条件。L1 是焦距 $f=100$ mm 的聚焦透镜，将基频光聚焦到非线性晶体上。

实验中采用 LBO 作为倍频晶体，晶体的切割角度满足 I 类相位匹配条件 ($\theta=90^\circ$ ， $\varphi=11.6^\circ$)，双面镀有 515 nm 和 1030 nm 的增透膜。为了得到高功率的飞秒绿光，采用厚度为 2.5 mm 的 LBO 晶体进行倍频实验。利用焦距 $f=150$ mm 的透镜对基频光和倍频光进行准直，之后用分束片 DM1 (dichroic mirror) 和 DM2 将基频光与倍频光进行分离。

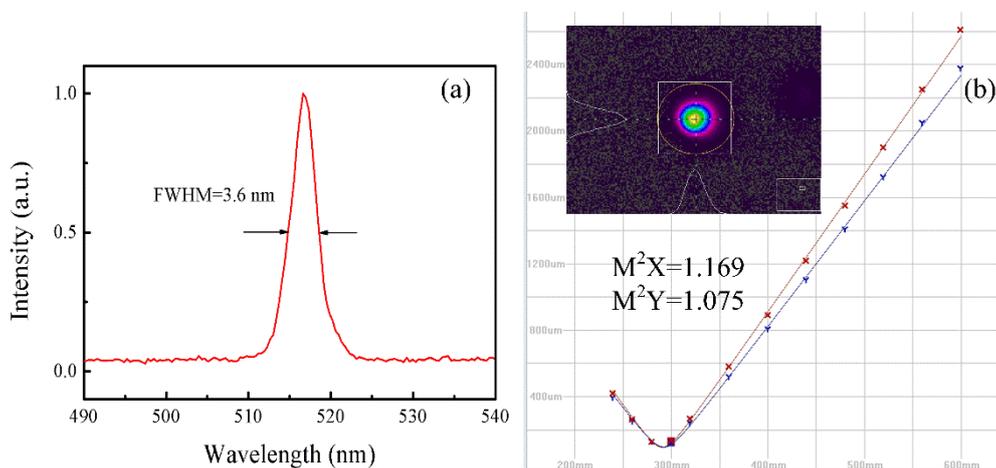


图 3.22 二次谐波光谱 (a) 和光束质量 M^2 因子

Fig. 3.22 Spectrum and beam quality of second harmonic pulse

按照图 3.21 所示的实验装置，基频光进入倍频晶体 LBO 后产生二次谐波，在 75.5 MHz 的重复频率下，基频光平均功率为 7 W，脉冲宽度接近 100 fs 的基频脉冲作用下，2.5 mm 厚的 LBO 晶体获得的二次谐波的最高平均功率为 3.75 W，倍频转换效率为 53.6%。图 3.22 (a) 描述了二次谐波的光谱曲线，光谱半高宽为 3.6 nm，对应的傅里叶极限变换脉宽为 77 fs。由于在 515 nm 波段并没有商用的自相关仪，因此只能通过理论模拟估算二次谐波的脉冲宽度。根据公式 (3-12) 和 (3-13)，当基频光信号为 100 fs，LBO 晶体厚度为 2.5 mm 时，可以计算得到二次谐波的脉宽约为 100.4 fs，可见晶体对二次谐波的脉宽展宽可以忽略不计。考虑到 2.5 mm 厚的 LBO 晶体在 1030 nm 倍频 515 nm 时 GVM 为 132.5 fs，因此最终得到的 515 nm 的脉宽小于 132.5 fs。利用商用 M^2 因子仪 (Spiricon M^2 -200S)，测量了倍频信号的光束质量，如图 3.22 (b) 所示，倍频信号的 M^2 因子 < 1.2 ，并且光斑比较圆，这主要是因为基频光具有较好的光束质量。随后我们测量了 515 nm 倍频信号的功率稳定性，如图 3.23 所示，在 4.5 小时内功率抖动 RMS 值为 0.2%。基于高功率的 515 nm 飞秒绿光，开展了一系列基于不同重

复频率的 BIBO-OPO 实验，同时进行了腔外倍频实验，最终实现了紫外-近红外波段的高重频飞秒激光输出。

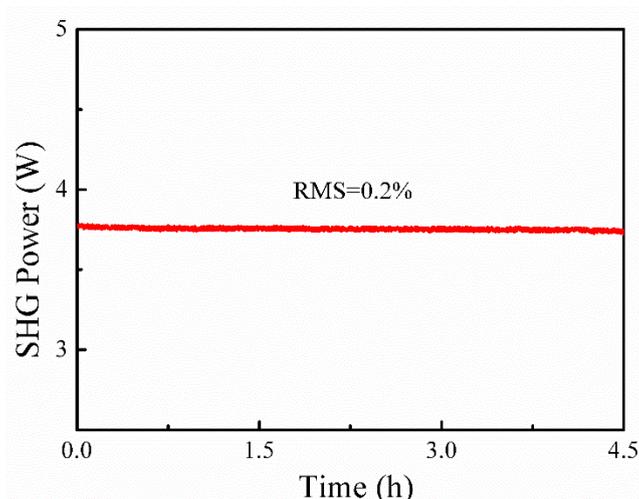


图 3.23 515 nm 倍频信号功率稳定性

Fig. 3.23 Power stability of 515 nm green laser

3.2.3 高重频 BIBO-OPO 实验研究

基于高功率的 515 nm 飞秒激光，我们展开了一系列同步泵浦 BIBO-OPO 实验。实验中选用 BIBO 作为参量晶体，首先通过理论模拟研究了 BIBO 晶体的色散性质以及波长调谐特性。BIBO 作为负双轴晶体，在 I 类相位匹配条件下，满足主平面 $Y-Z$ 内的 $e+e \rightarrow o$ 结合方式，即泵浦光为 o 光时，信号光和闲频光都为 e 光。利用 matlab 软件，模拟了泵浦光为 515 nm 时，BIBO 晶体的 I 类相位匹配曲线，如图 3.23 所示。当信号光波长范围在 693-1000 nm 时，相位匹配角在 $166.8-177.8^\circ$ 之间，为了兼顾整个信号光调谐范围，最终我们选取的 BIBO 晶体的切割角度为 $\theta=174^\circ; \varphi=90^\circ$ 。另一方面，选择这一切割配角度时，在 515 nm 的泵浦光条件下，根据相位匹配条件，OPO 产生的信号光中心波长为 718 nm，属于可见光波段，有利于判断 OPO 信号光产生。

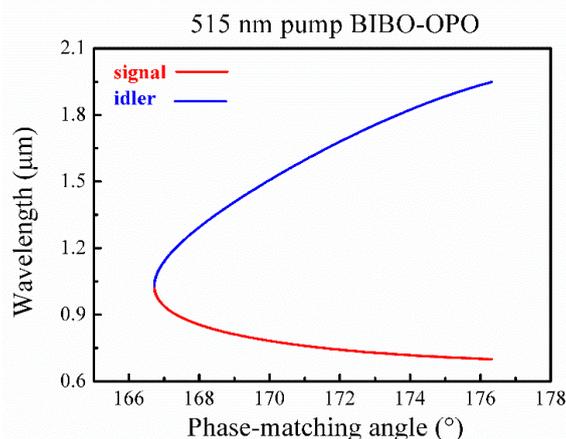


图 3.24 515 nm 泵浦下的 BIBO I类相位匹配曲线

Fig. 3.24 Curve of type I phase matching pumped at 515 nm in BIBO

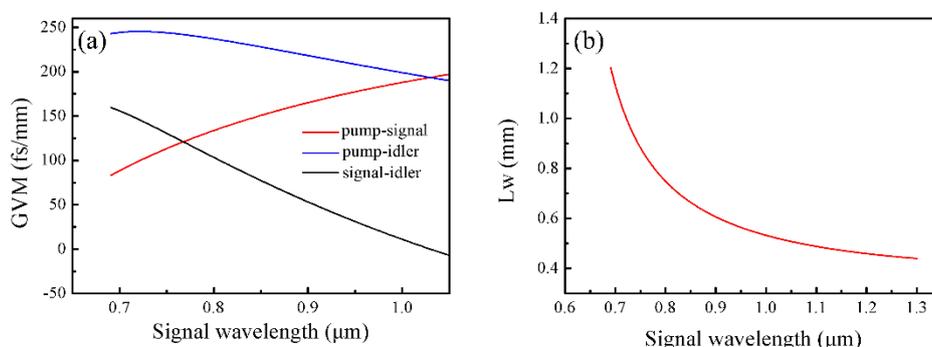


图 3.25 BIBO-OPO 群速度失配曲线(a)和走离长度(b)

Fig. 3.25 Curve of group velocity mismatch and walk off length in BIBO-OPO

基于 BIBO 晶体的I类相位匹配曲线，通过计算可以得到群速度失配曲线以及走离长度。如图 3.25 所示，当信号光波长范围在 693-1000 nm 时，泵浦光与信号光之间的 GVM 平均值为 134 fs/mm，当泵浦光和信号光脉冲宽度均为 100 fs 时，走离长度平均值约为 0.89 mm，考虑到晶体 GVD 造成的脉冲展宽影响，最终选择的 BIBO 晶体长度为 1.5 mm。

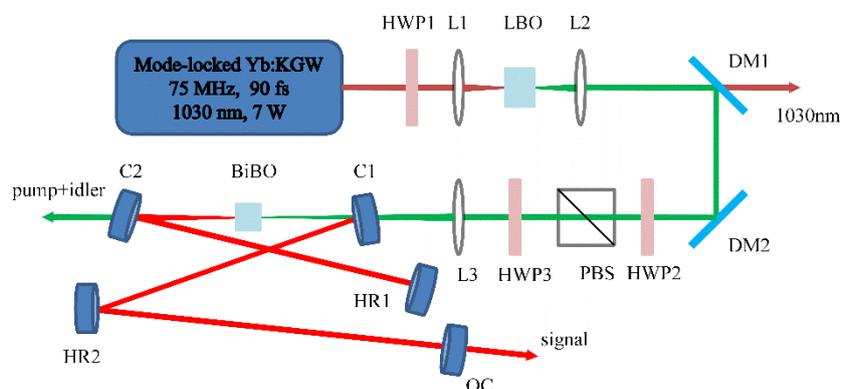


图 3.26 高重频 BIBO-OPO 实验装置图

Fig. 3.26 The experimental setup of BIBO-OPO

图 3.26 描述了飞秒绿光泵浦的高重频 BIBO-OPO 实验装置。采用 515 nm 飞秒脉冲作为泵浦源，HWP2 和 PBS 用来调整泵浦光的功率，HWP3 用来改变泵浦光的偏振方向，使其满足 BIBO 晶体 I 类相位匹配条件。泵浦光通过焦距 $f=100$ mm 的透镜聚焦到 BBO 晶体上。OPO 腔型为简单的线形腔，其中 C1 和 C2 为焦距 $f=100$ mm 的凹面镜，镀有对 488-532 nm 高透 ($T>95\%$)，620-1080 nm 高反 ($R>99.9\%$) 的介质膜，HR1 和 HR2 为平面高反镜，镀有对 620-1120 nm 波段高反的介质膜。OC 为输出镜，透过率为 11%。将 HR1 固定在一维精密平移台上，用来实现 OPO 与泵浦源的腔长匹配。实验中所采用的 BIBO 晶体切割角度为 $\theta=174^\circ$ ， $\varphi=90^\circ$ ，满足 I 类相位匹配条件，晶体的尺寸为 $5\times 5\times 1.5$ mm，双面镀有对 510-530 nm 和 700-1040 nm 波段的增透膜。通过合理设计腔型，我们将 OPO 的重复频率分别设置为 75.5 MHz 和 151 MHz，前者与泵浦源重复频率一致，后者为泵浦源重复频率的 2 倍。

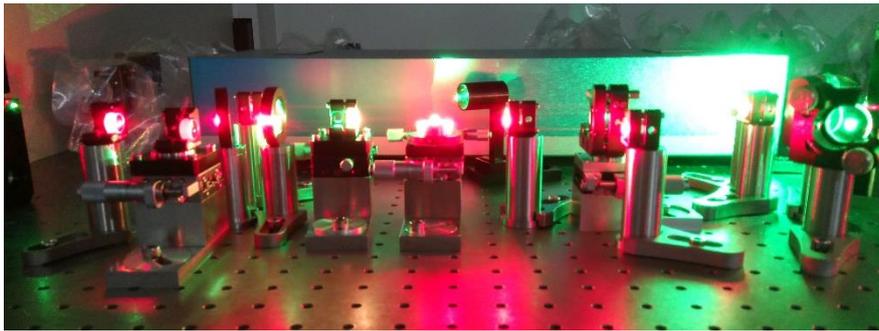


图 3.27 BIBO-OPO 实际运行效果

Fig. 3.27 Real picture of BIBO-OPO

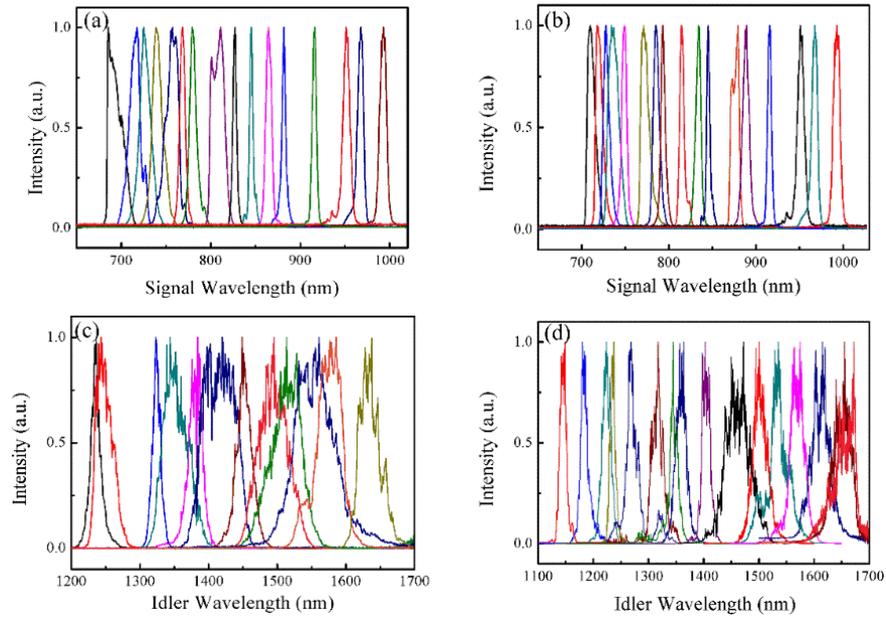


图 3.28 BIBO-OPO 信号光和闲频光光谱调谐曲线：(a) 75.5 MHz 信号光；
(b) 151 MHz 信号光；(c) 75.5 MHz 闲频光；(d) 151 MHz 闲频光

Fig. 3.28 the spectra of signal and idler wavelength: (a) signal at 75.5 MHz;
(b) signal at 151 MHz; (c) idler at 75.5 MHz; (d) idler at 151 MHz

通过匹配腔长，分别实现了 BIBO-OPO 在 75.5 MHz 和 151 MHz 条件下的运转。如图 3.28 所示，通过改变 BIBO 晶体的相位匹配角度，优化腔长，最终均实现了可见光-近红外波段的飞秒激光输出。其中信号光波长调谐范围在 693-1000 nm，对应的闲频光范围在 1061-2005 nm，而实际过程中受到光谱仪测量范围的限制，通过测量得到的闲频光范围在 1100-1700 nm。从图中可以看出，BIBO-OPO 在不同重复频率条件下，其输出的信号光和闲频光波长调谐范围并没有明显差别，同时光谱带宽也没有发生巨大变化，这是因为信号光和闲频光的光谱带宽是由泵浦光带宽和发散特性所决定，跟自身的峰值功率无关。测量光谱同时，我们也记录了信号光和闲频光的功率随波长的变化曲线，如图 3.29 所示，信号光功率大部分在 400 mW 以上，只是接近简并点（1030 nm）处，功率比较低，而闲频光功率整体在 100 mW 以上。

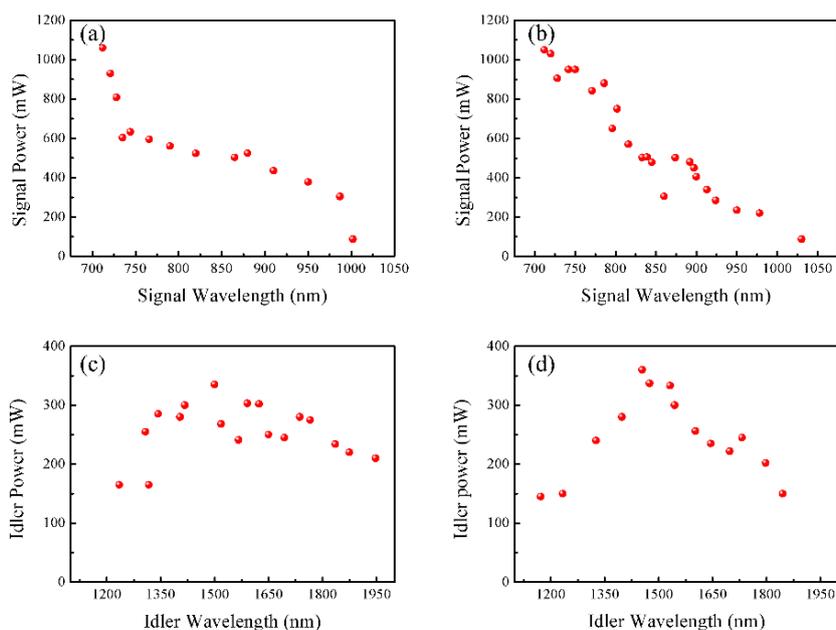


图 3.29 信号光和闲频光功率随波长变化曲线：(a) 75.5 MHz 信号光；
(b) 151 MHz 信号光；(c) 75.5 MHz 闲频光；(d) 151 MHz 闲频光

Fig. 3.29 the output power of signal and idler wavelength: (a) signal at 75.5 MHz;
(b) signal at 151 MHz; (c) idler at 75.5 MHz; (d) idler at 151 MHz

通过旋转半波片 HWP2 可以改变泵浦光的功率，实验发现当 OPO 在重复频率 75.5 MHz 条件下运转时，泵浦光功率阈值为 480 mW，而在 151 MHz 运转时阈值上升到 660 mW。OPO 的重复频率越高，信号光在腔内往返的次数就越多，因此经历的损耗就越大，需要的泵浦光能量就越高。当重复频率为 75.5 MHz 时，通过改变 HR1 的位置，可以获得 OPO 腔长的容忍量。如图 3.30 所示，OPO 腔长的容忍量约为 40 μm ，在这个范围内都可以实现信号光的振荡。当腔长的失谐量为 $\Delta L_{\text{opo}}=0$ 时，此时信号光中心波长在 712 nm，这时输出功率最大，为 1.09 W。当移动 HR1 位置增加 OPO 腔长时，信号光波长向长波方向移动，当 $\Delta L_{\text{opo}}=20 \mu\text{m}$ 时，此时中心波长为 750 nm，但是功率下降比较严重，输出功率仅为 50 mW，并且信号光输出变得不稳定，这时 OPO 和泵浦源腔长匹配处于临界状态。继续移动 HR1，OPO 信号光消失，说明二者腔长已经完全失配。当移动 HR1 的位置减小腔长时，信号光波长向短波方向移动，当 $\Delta L_{\text{opo}}=-20 \mu\text{m}$ 时，中心波长为 690 nm，这时由于处于腔长失配的临界状态，信号光功率下降到 30 mW，输出同样变得不稳定。在 OPO 腔长允许范围内，不改变 BIBO 晶体相位匹配角度的条件下，信号光光谱调谐范围在 690-750 nm 之间。根据以上实验结果，改变腔长虽

然可以进行光谱调谐，但是并不能得到最大功率的信号光输出。之后我们测量了 OPO 重复频率在 151 MHz 时腔长的容忍量，与之前相比，腔长容忍量约为 23 μm ，减小了将近一半。这是因为在重复频率为 75.5 MHz 条件下，信号光脉冲在谐振腔内往返一次后在到达 BIBO 晶体时与第二个泵浦光脉冲重合，而在 151 MHz 时，信号光要在腔内往返两次才与泵浦光重合，这使得信号光与泵浦光在时间上的延时增加了一倍，最终导致腔长的容忍量减小。

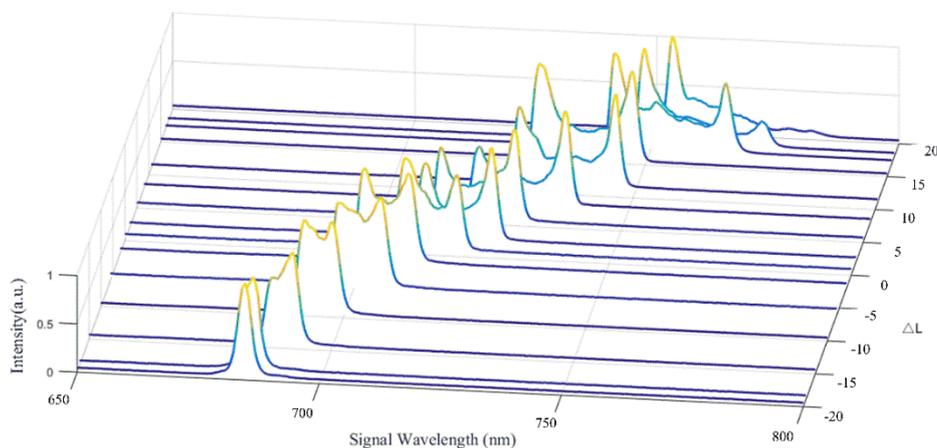


图 3.30 重复频率 75.5 MHz 下信号光光谱随腔长容忍量 ΔL 变化曲线

Fig. 3.30 the variation curve of signal spectrum function as the tolerate length ΔL

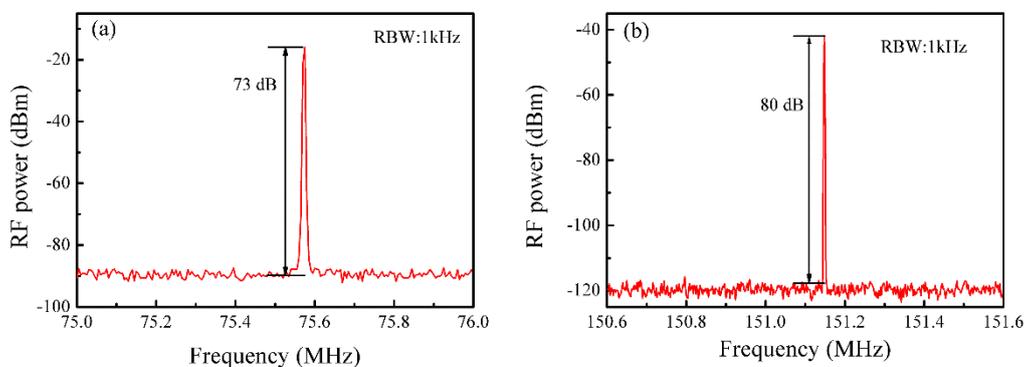


图 3.31 不同重复频率下的频谱曲线：(a) 75.5 MHz; (b) 151MHz

Fig. 3.31 Typical radio frequency spectrum at different repetition rate:

(a) 75.5 MHz; (b) 151 MHz

接下来测量了不同重复频率条件下，OPO 在分辨率为 1 kHz 时的频谱，如图 3.31 所示，重复频率为 75.5 MHz 时，信号光的信噪比为 73 dB，而在 151 MHz 时，信噪比提高到 80 dB。在信号光输出平均功率相差不大的条件下，OPO 的重复频率越高，就表示每个纵模频率成分的功率就越大，从而在频谱测量过程中可以获得更高的信噪比。

用光谱仪和自相关仪测量了信号光和闲频光的光谱和脉宽。如图 3.32 所示，在未采用色散补偿的条件下，当 OPO 在 75.5 MHz 运转时，在中心波长 741 nm 时得到的信号光脉冲宽度最短，为 124 fs，信号光在整个调谐范围内的脉冲宽度在 124-280 fs 之间。对应的闲频光的脉冲宽度范围在 67-243 fs 之间，中心波长为 1530 nm 时获得的脉冲宽度最短，为 67 fs。而当 OPO 在 151 MHz 条件下运转时，信号光和闲频光在光谱调谐范围内的脉冲宽度与 75.5 MHz 实验结果相比，并没有明显的变化。信号光的脉冲宽度在 116.8-234 fs 之间，对应的闲频光脉冲宽度在 62.5-225 fs 范围。可以发现，在未进行色散补偿的条件下，信号光的脉冲宽度与泵浦光相比展宽的比较严重，其展宽原因来自于 BIBO 晶体中的 GVM 效应。因此需要在腔内加入啁啾镜或者棱镜对等色散补偿元件，从而实现窄脉宽的信号光输出。

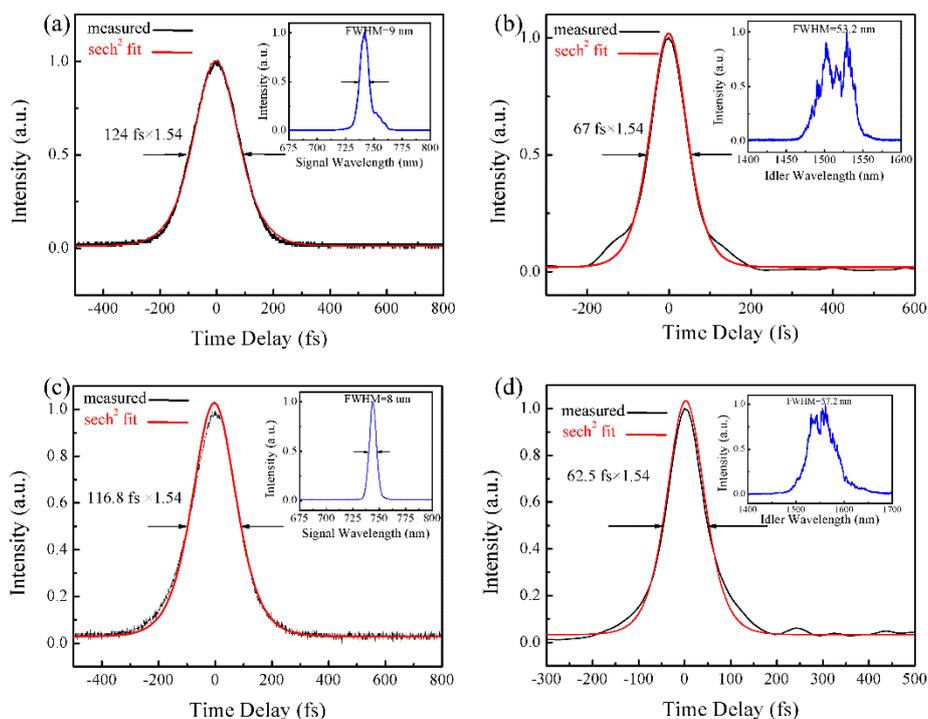


图 3.32 不同重复频率下的脉冲宽度和相对应的光谱：(a) 75.5 MHz 信号光；

(b) 75.5 MHz 闲频光；(c) 151 MHz 信号光；(d) 151 MHz 闲频光

Fig. 3.32 Typical intensity autocorrelation trace of the OPO signal ($\times 1.543$, assuming a sech^2 pulse shape). Inset: the corresponding optical spectrum: (a) signal at 75.5 MHz;

(b) idler at 75.5 MHz; (c) signal at 151 MHz; (d) idler at 151 MHz

我们测量了不同重复频率条件下的 OPO 信号光光束质量 M^2 因子，如图 3.33 所示，信号光的光斑比较圆，为近高斯光束的基模输出，其 x 方向和 y 方向上的

M^2 因子均小于 1.5。最后测量了信号光功率稳定性，如图 3.34 所示，在信号光最大输出功率条件下，75.5 MHz 和 151 MHz 运行条件下功率抖动 RMS 值分别为 2.0% 和 1.8%，说明 OPO 运转比较稳定。

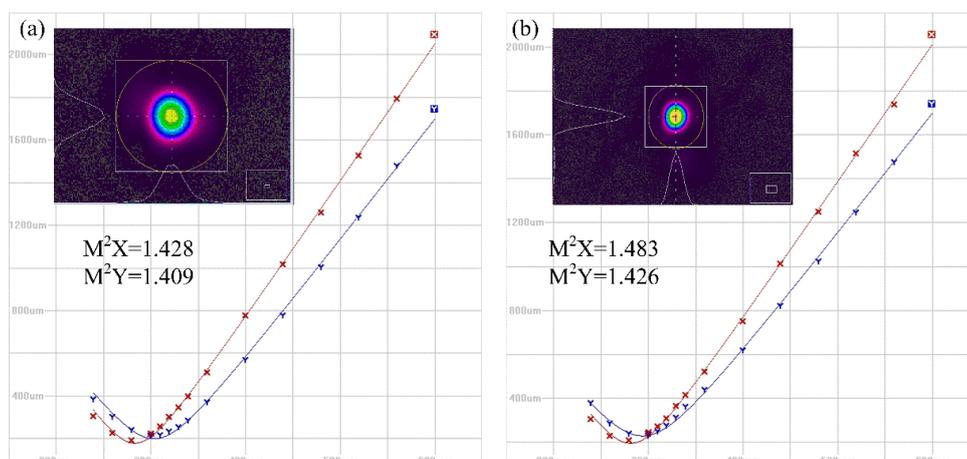


图 3.33 信号光光束质量 M^2 因子: (a) 75.5 MHz; (b) 151 MHz

Fig. 3.33 Beam quality of OPO signal pulse: (a) 75.5 MHz; (b) 151 MHz

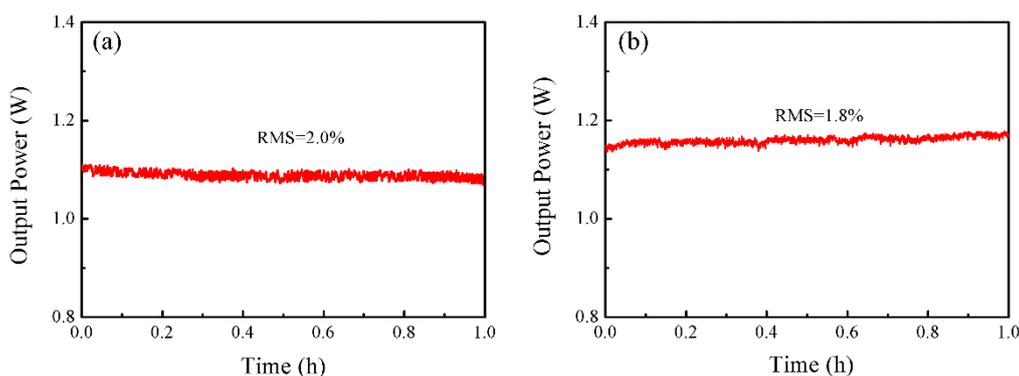


图 3.34 信号光功率稳定性: (a) 75.5 MHz; (b) 151 MHz

Fig.3.34 The stability of optput power of signal pulse: (a) 75.5 MHz; (b) 151 MHz

在上一章中曾经提到，OPO 的腔型总体上可以分为两种，即线形腔和环形腔。之前的实验中，OPO 的重复频率分别设置为 75.5 MHz 和 151 MHz，对应的腔长分别为 1.98 m 和 0.993 m，在这个长度范围内，OPO 整个结构的自由空间比较充分，可以利用多个折叠反射镜来优化 OPO 的体积，因此采用线形腔就可以满足 OPO 高重频的条件。但是，如果要进一步提升 OPO 的重复频率，只是缩短腔长，操作起来比较困难，受限于镜架、旋转台和机械件尺寸等条件，通过线形腔实现接近 GHz 的 OPO 信号光输出比较困难。然而，对于同样的重复频率，环形腔的腔长为线形腔的 2 倍，这就为 OPO 谐振腔提供了比较充裕的空间，为了实现重复频率接近 GHz 的 OPO 信号光输出，腔型通常采用环形腔。因此在 755

MHz BIBO-OPO 实验中，采用环形腔结构。同时为了克服高重频腔内损耗较大的缺点，需要选择较小输出率的输出镜，从而提高腔内功率密度。实验装置如图 3.35 所示，透镜 L1 的焦距为 $f=100\text{ mm}$ ，C1 和 C2 为焦距 $f=100\text{ mm}$ 的凹面镜，双面镀有对 515 nm 的增透膜和 $620\text{-}1080\text{ nm}$ 的高反膜。HR1 为高反镜，对 $620\text{-}1120\text{ nm}$ 高反，OC 为输出镜，为了提高腔内功率密度，输出率选为 3%。实验中采用的 BIBO 晶体的厚度为 1.5 mm ，切割角度为 $\theta=174^\circ$ ； $\varphi=90^\circ$ ，双面镀有对 515 nm 和 $700\text{-}1040\text{ nm}$ 的增透膜。将 OPO 的腔长设置为 397.3 mm ，此时对应的 OPO 重复频率为 755 MHz ，相当于泵浦源的 10 倍。为了精细的控制腔长，将 OC 放在一个精密平移台上，用来实现 OPO 和泵浦源的腔长匹配。

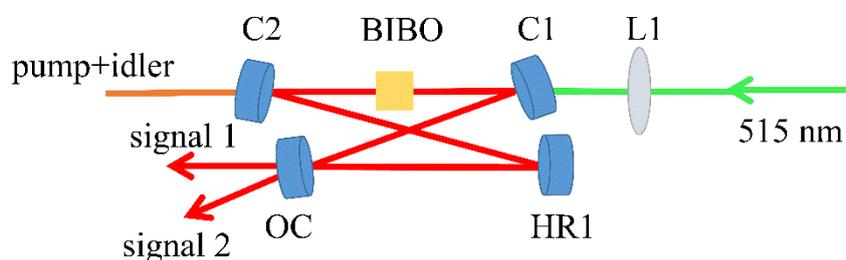


图 3.35 755 MHz BIBO-OPO 实验装置

Fig. 3.35 Experimental setup of the 755 MHz BIBO-OPO

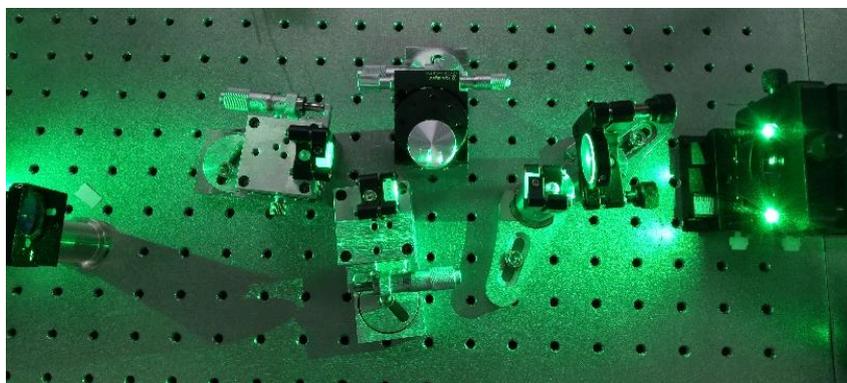


图 3.36 755 MHz BIBO-OPO 实际运行效果

Fig. 3.36 Real picture of 755 MHz BIBO-OPO

首先，通过优化 OPO 的腔长，使其跟泵浦源腔长匹配，可以实现信号光振荡。当出现信号光时，与线形腔不同的是环形腔有两路信号光输出，这是环形腔的结构造成的。在 3.75 W 的泵浦光功率下，当信号光中心波长为 746 nm 时，最终获得的两路信号光最高输出功率分别为 680 mW 和 660 mW ，泵浦光到信号光的转换效率为 35.7% 。通过改变泵浦光的强度，最终得到的泵浦光功率阈值为 2 W 。随后进行了波长调谐实验，通过改变晶体的相位匹配角度，同时优化腔长，

最终获得信号光的调谐范围在 693-1000 nm，如图 3.37 (a) 所示，在整个光谱调谐范围内信号光的整体输出功率在 150 mW 以上。

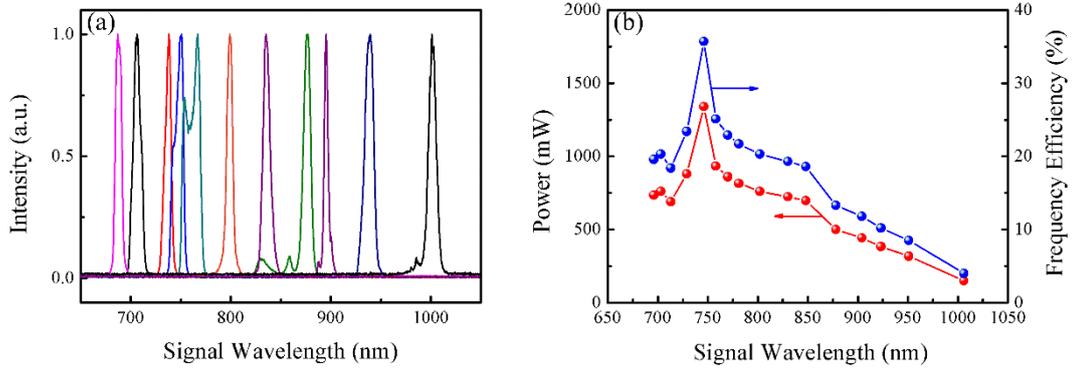


图 3.37 信号光光谱和功率调谐曲线

Fig.3.37 The spectrum and output power of signal pulse

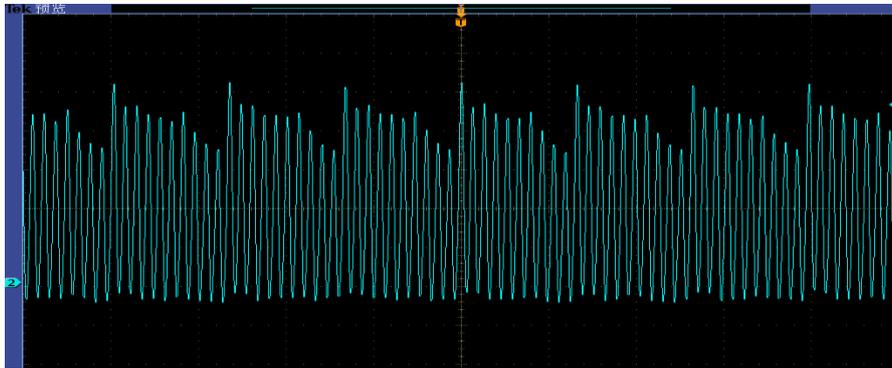


图 3.38 信号光脉冲序列(10 ns/div)

Fig. 3.38 OPO signal pulse trains at 10 ns/div

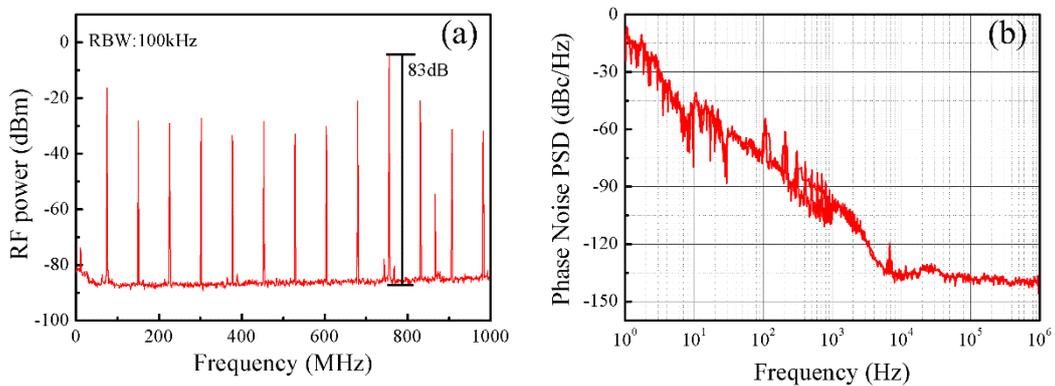


图 3.39 信号光频谱序列(a)和相位噪声(b)

Fig. 3.39 Typical radio-frequency spectrum and phase noise PSD of signal

采用示波器测量了重复频率为 755 MHz 时信号光的脉冲序列，如图 3.38 所示，当分辨率为 10 ns/div 时，可以看出整个脉冲序列成周期性变化，同一个周期内含有 10 个脉冲序列，这与 OPO 重复频率为泵浦源的 10 倍相对应。图 3.39(a)

描述了 755 MHz OPO 信号光的频谱序列，在 755 MHz 的信噪比高达 83 dB，并且在 1 Hz-1 GHz 范围内还包含了其他频率的谐频信号，这些重复频率都和泵浦源的重复频率成倍数关系。图 3.39 (b) 描述了信号光的相位噪声，可以看出在 10 kHz-1 MHz 范围内，信号光相位噪声比较稳定，平均值为-135 dB，这主要归功于全固态泵浦源。而在 1 Hz-10 kHz 范围内噪声起伏比较大，这部分的相位噪声主要是由周围环境扰动，腔长失谐等引起的。通过改变 OC 输出镜的位置，测量了高重复频率条件下的 OPO 腔长容忍量，如图 3.40 所示。实验中发现，OPO 腔长容忍量 ΔL 非常小，大约为 7 μm 。与之前 75.5 MHz 和 151 MHz 运行状态相比，此时已经无法通过改变腔长来进行光谱调谐。随着 OPO 重复频率的增加，腔长容忍量 ΔL 越来越小。

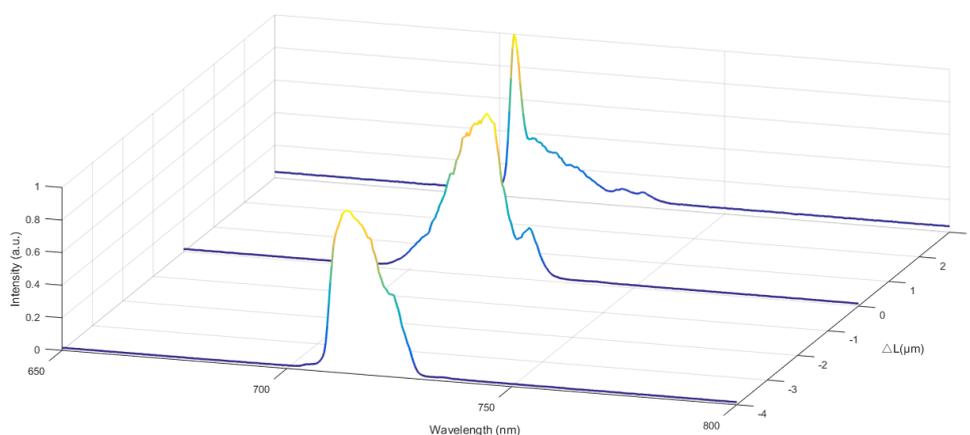


图 3.40 755 MHz OPO 信号光光谱随腔长容忍量 ΔL 变化曲线

Fig. 3.40 The variation curve of signal spectrum function as the tolerate length ΔL at 755 MHz

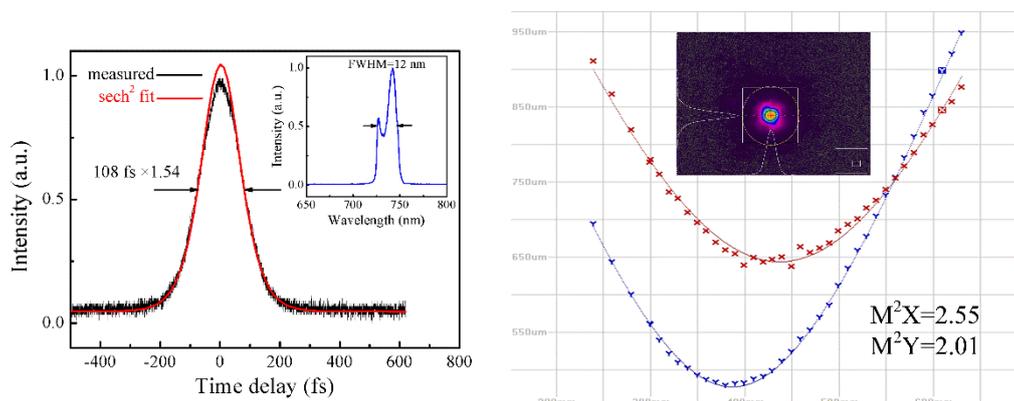


图 3.41 信号光 740 nm 脉冲宽度和光束质量 M^2 因子

Fig. 3.41 The pulse duration and beam quality of OPO signal at 740 nm

利用光谱仪测量了信号光的脉冲宽度，在未采取色散补偿的条件下，整个调谐范围内的脉冲宽度在 108-350 fs 之间。如图 3.41 (a) 所示，当信号光中心波长

为 740 nm 时, 获得的脉冲宽度最短, 为 108 fs, 此时光谱带宽为 12 nm, 对应的时间带宽积 $\Delta\tau\Delta\nu = 0.71$ 。同时测量了光束质量 M^2 因子, 在 x 和 y 方向上分别为 2.55 和 2.01。

下面对 75.5 MHz、151 MHz 和 755 MHz BIBO-OPO 实验进行总结, 如表 3.2 所示。OPO 在不同重复频率条件下运转时, 其信号光波长和闲频光波长调谐范围、输出功率、脉冲宽度和功率稳定性等输出参数几乎没有差别。然而, 随着重复频率的提升, 其输出信号光的信噪比呈上升趋势, 同时 OPO 腔长的容忍量大幅度减小, 功率稳定性下降。

表3.2 BIBO-OPO不同重复频率下的输出特性

	75.5 MHz	151 MHz	755 MHz
信号光调谐范围	693-1000 nm	693-1000 nm	693-1000 nm
闲频光调谐范围	1100-1700 nm	1100-1700 nm	1100-1700 nm
信号光最大功率	1.1 W	1.09 W	1.3 W
闲频光最大功率	350 mW	375 mW	
信号光脉宽	124-280 fs	116.8-234 fs	108-350 fs
闲频光脉宽	67-243 fs	62.5-225 fs	
信号光功率稳定性	2.0%	1.8%	
腔长容忍量	40 μm	23 μm	7 μm
信噪比	73 dB	80 dB	83 dB
光束质量 M^2	<1.5	<1.5	<2.6

最后在重复频率 75.5 MHz 条件下, 进行了 OPO 腔外倍频实验。实验装置如图 3.42 所示, 其中 L1 和 L2 的透镜焦距均为 $f=75$ mm, 采用 0.8 mm 厚的 BBO 作为倍频晶体, 晶体切割角度为 $\theta=33.1^\circ; \varphi=0^\circ$, 双面镀有对 700-1000 nm 和 350-500 nm 的增透膜。使用三角棱镜 (prism) 将信号光与倍频光进行分离。

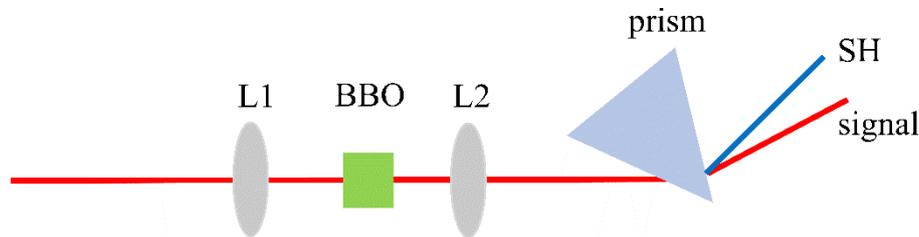


图 3.42 OPO 腔外倍频实验示意图

Fig. 3.42 Experimental setup of the SH pulse

通过改变 OPO 输出的信号光波长和 BBO 晶体角度, 最终实现了 350-488 nm 紫外波段的飞秒激光输出。如图 3.43 (b) 所示, 在整个光谱调谐范围内输出功率都在 50 mW 以上, 在 400 nm 时的输出功率最大, 为 172 mW, 倍频转换效率

为 23.3%。影响倍频转换效率的主要因素有：(1) 信号光功率、脉冲宽度、光束质量以及透镜的焦距，信号光的光束特性越好有利于获得高功率的倍频激光；(2) BBO 晶体长度，虽然 BBO 晶体的有效非线性系数比较高，但是其 GVM 和 GDD 也相对较大，合理的选择晶体长度有利于提高倍频转换效率。

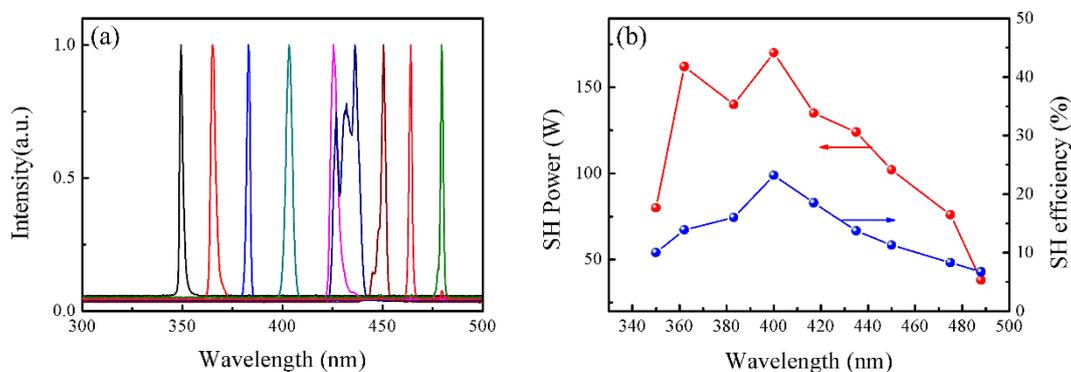


图 3.43 倍频光光谱和功率随波长变化曲线

Fig. 3.43 Spectrum and output power of OPO signal

3.3 双波长可见光-近红外可调谐飞秒 OPO

近年来，多波长激光器的研究成为国际上一个比较重要的前沿领域，特别是双波长的超短脉冲激光，在泵浦探测，差频产生 THz，相干合成等领域有着重要的应用。最初利用激光增益介质发射谱中含有多个发射峰的特性，在锁模全固态激光器和光纤放大器中均实现了双波长的超短脉冲激光运转。然而受到增益介质荧光发射谱的限制，双波长的光谱被限定在一定的范围内，一般在近红外波段，并且调谐范围也比较有限。另外，产生的双波长脉冲尽管同步精度比较高，但是其相位是随机的，并没有锁定，限制了其应用范围。OPO 的出现对于双波长激光器的发展起到了重要的推动作用。根据 OPO 原理，其输出的信号光和闲频光在广义上可以称为双波长，但是信号光和闲频光的中心波长和平均功率通常相差比较大，对于相干合成和 THz 产生等并不适用。在 OPO 的发展过程中，人们逐渐发现了信号光双波长现象。通过合理的控制 OPO 腔内色散，使信号光 GVD 处于净零色散区域，可以实现信号光的双波长超短脉冲激光输出。1997 年，K. C. Burr 等人利用 PPLN 晶体，获得了信号光双波长超短脉冲激光。除此之外，利用一些非线性晶体的双波长相位匹配特性（LBO，BBO 等），在 OPO 谐振腔中可以产生双波长振荡，从而实现信号光或闲频光的双波长输出。2014 年，天津大学

的顾澄琳等人利用大模场面积的光子晶体光纤作为泵浦源，结合 LBO 晶体实现了信号光的双波长输出。与 LBO 和 BBO 晶体相比，BiBO 在兼顾了高损伤阈值、宽透光范围等优良特性外，具有较高的非线性系数，可以和 KTP 相比。因此，本实验采用 BiBO 作为参量晶体，对 OPO 中的信号光双波长现象进行了详细的分析。

3.3.1 BiBO-OPO 信号光双波长实验研究

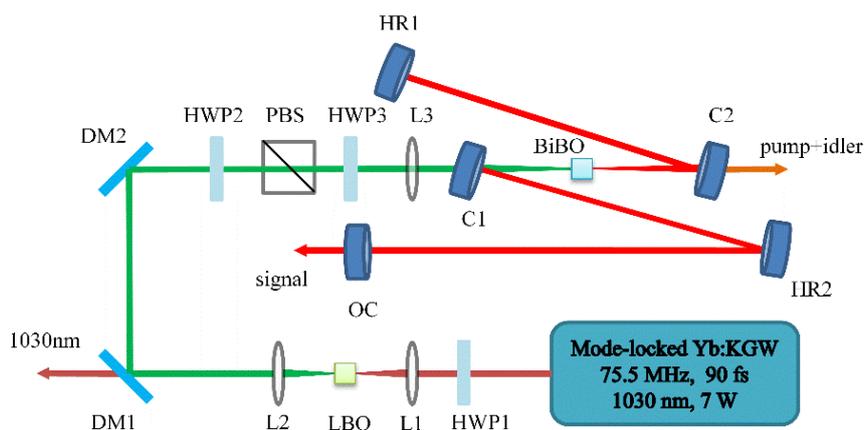


图 3.44 BiBO-OPO 信号光双波长实验装置

Fig. 3.44 Experimental setup of the dual-signal wavelength BiBO-OPO

实验装置如图 3.44 所示，和上一节中高重频 BiBO-OPO 实验装置相类似，采用 515 nm 的飞秒绿光作为泵浦源，不同的地方在于透镜 L3 的聚焦 $f=150\text{ mm}$ ，C1 凹面镜的焦距为 $f=150\text{ mm}$ 。BiBO 晶体尺寸为 $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 2.4\text{ mm}$ ，切割角度为 $\theta=33.1^\circ$ ， $\varphi=0^\circ$ ，双面镀有 515 nm 和 700-1400 nm 的增透膜。OPO 的腔长为 0.993 m，对应的重复频率为 151 MHz，是泵浦源的 2 倍。

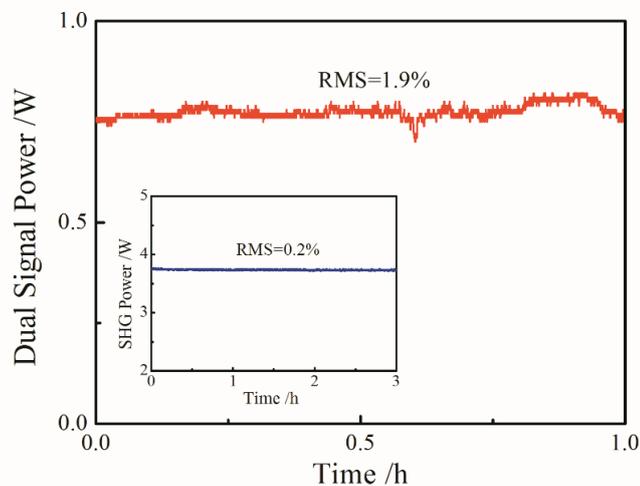


图 3.45 BIBO-OPO 信号光双波长功率稳定性曲线

Fig. 3.45 Long-term power stability of the maximum output power for 1 h at the wavelength of 707 and 750 nm. Inset: power stability of the SHG power in 3 hour

当 OPO 腔长与泵浦源腔长相匹配时,可以得到较为稳定的双波长运转。在 3.75 W 的泵浦光功率下,信号光双波长的最大功率为 760 mW,对应的中心波长分别为 707 nm 和 750 nm,泵浦光到信号光的转换效率为 20.3%。如图 3.45 所示,我们测量了功率稳定性,1 小时内的功率抖动 RMS 值为 1.9%,信号光的不稳定来自于周围环境的扰动,腔长失谐等因素。在改变腔长的过程中,可以发现信号光双波长的光谱发生明显的变化。图 3.46 描述了双波长的光谱变化趋势:

(a) 最初信号光的两个中心波长分别在 695 nm 和 764 nm; (b) - (d) 随着 OPO 腔长的进一步缩短,这两个信号光逐渐向中心靠拢; (e) 最后,两个信号光合并在一起,此时光谱中心波长为 733 nm。类似的结果也在 PPLN-OPO 中出现过,通过控制腔内信号的 GVD,使波长不同的两个信号光在腔内的 GVD 值处于净零色散区域,从而实现双波长振荡。然而在 BIBO-OPO 实验中,腔内并没有色散补偿元件,因此两个信号光的 GVD 值不可能处于净零色散区域,这说明双波长的运转并不完全取决于净零色散。之前的理论计算中可以得出,当泵浦光中心波长在 515 nm 时,BIBO 晶体的相位匹配曲线中并没有出现双波长相位匹配特性,因此实现双波长振荡可能存在其他的必要条件。当泵浦光的峰值功率较高时,相位匹配条件并不是十分严格,即使在相位失配的临界条件下依旧可以获得较高的增益,因此平衡双波长与泵浦光之间的相位匹配与群速度失配尤为重要。泵浦光进入 BIBO 晶体产生两个不同波长的信号光,由于晶体中的群速度失配效应,信号光在晶体中的传播速度落后于泵浦光,同时由于相互作用,对信号光的脉冲宽度造成了一定的展宽。实验中采用的 BIBO 晶体厚度为 2.4 mm,因此对泵浦光和信号光引入了较大的群速度失配。如图 3.46 (c) 中所示,当信号光的中心波长分别为 723 nm 和 748 nm 时,它们与泵浦光之间的 GVM 分别为 248 fs 和 264 fs,这表明两个信号光在时间上的延迟只有 16 fs,并且它们与泵浦光在时间上部分重合,获得的参量增益几乎相同。从图中可以看出,测量得到的 723 nm 和 748 nm 的光谱强度相差不大,符合之前的理论分析。随着腔长的进一步增加,信号光之间的光谱间隔越来越大,同时在时间上的延时也越来越大,如图 3.46 (a)

所示，当信号光中心波长分别为 695 nm 和 764 nm 时，光谱之间的间隔约为 60 nm，在时间上产生的延时为 80 fs，几乎与泵浦光的脉冲宽度相一致，在这种运行条件下，其中一束信号光较好的满足相位匹配条件，但面临着较大的群速度失配。而另一束信号光虽然在时间上与泵浦光重合的比较好，但处在满足相位匹配的临界条件，两个不同波长的信号光都得到了一定的参量增益。通过上述分析可以得出结论，通过平衡信号光和泵浦光之间的相位匹配与群速度失配，可以使信号光获得相同的参量净增益，即可以在腔内实现信号光双波长振荡。当这一平衡被打破时，双波长运转消失，随即在腔内产生单一的信号光振荡。

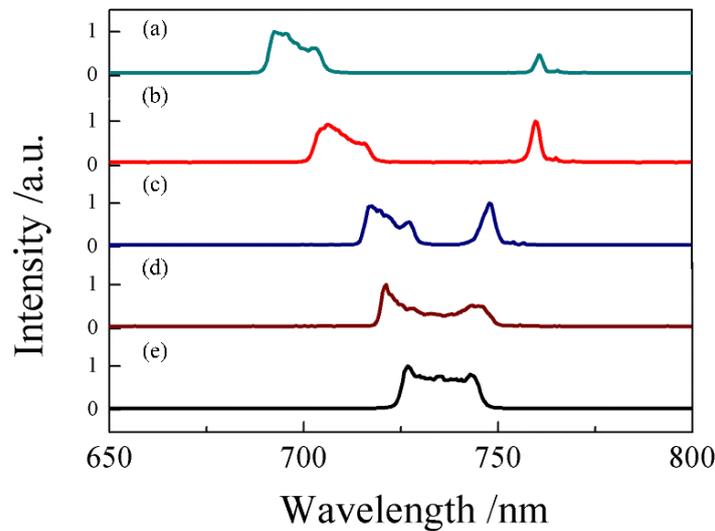


图 3.46 双波长光谱变化曲线

Fig. 3.46 Dual-wavelength spectra of the signal pulse.

(a)–(e) Shows the changing process of signal when the cavity length is continuously shorted

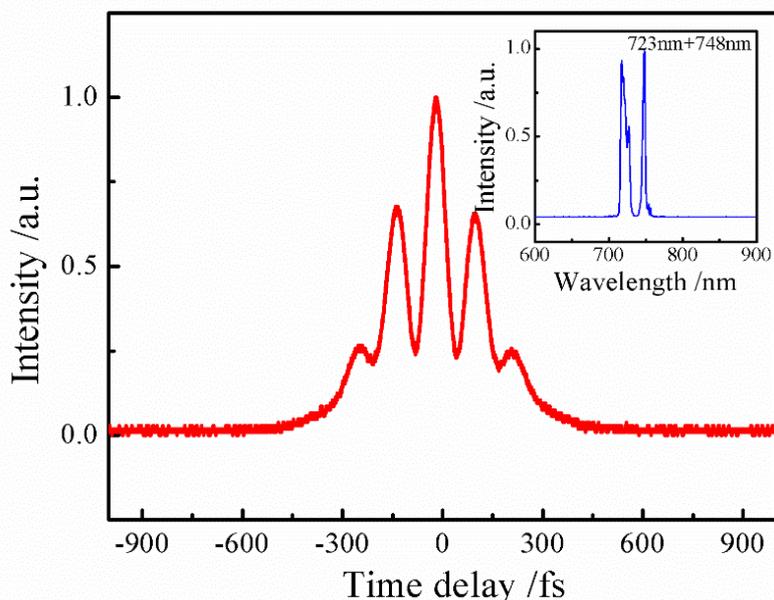


图 3.47 双波长运转条件下的脉冲宽度和对应的光谱曲线

Fig. 3.47 Intensity autocorrelation trace of the dual-signal when the wavelength is operation at 723 and 748 nm.

Inset: corresponding to spectra of dual signal

利用商用自相关仪测量了信号光双波长运转时的脉冲宽度,如图 3.47 所示,当信号光的中心波长分别为 723 nm 和 748 nm 时,其对应的自相关曲线在主峰两侧各有一个副峰,说明脉冲具有比较大的群速度色散。其中副峰的形成来自于 723 nm 和 748 nm 之间的和频过程,同时表明信号光双波长在时间上存在一定的延迟,而中间的主峰来自于 723 nm 和 748 nm 的倍频过程,主峰与副峰的脉冲宽度分别为 71 fs 和 83 fs。由于 723 nm 和 748 nm 的光谱间隔比较小,它们在 BBO 晶体中 I 类相位匹配条件下的相位匹配角仅差 1.2°,因此采用传统的基于 BBO 倍频信号的商用自相关仪无法测量单一的信号光脉冲宽度。随着腔长的进一步缩短,OPO 信号光双波长逐渐向中心靠拢,直到最后合为一个波长。当信号光中心波长为 728 nm 时,获得 1.2 W 的最高输出功率,此时转换效率高达 32%。我们测量了 OPO 信号光单波长运转时的脉冲宽度,如图 3.48 所示,在腔内未采取色散补偿的条件下,728 nm 时的脉冲宽度为 149 fs,此时对应的光谱带宽为 8.9 nm,时间带宽积 $\Delta\tau\Delta\nu=0.75$,这表明腔内的信号光脉冲里还存在大量啁啾。

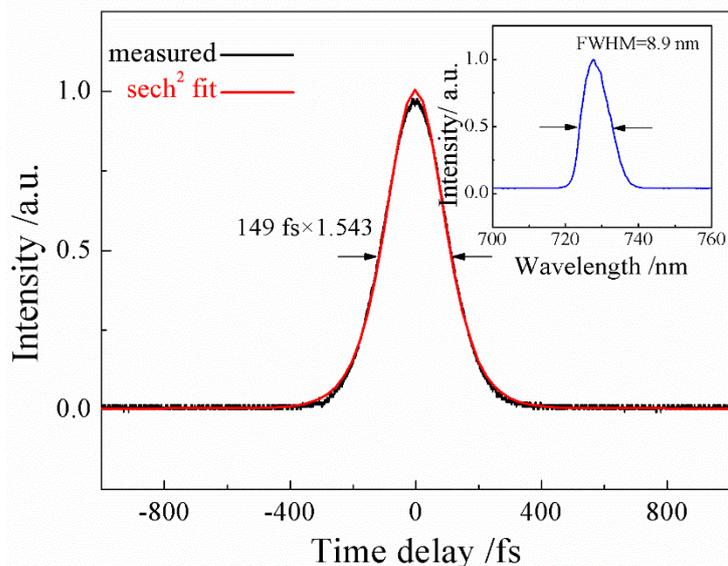


图 3.48 信号光在 728 nm 时的脉冲宽度和光谱曲线

Fig. 3.48 Intensity autocorrelation trace of single-wavelength at 728 nm and inset: corresponding to signal spectra

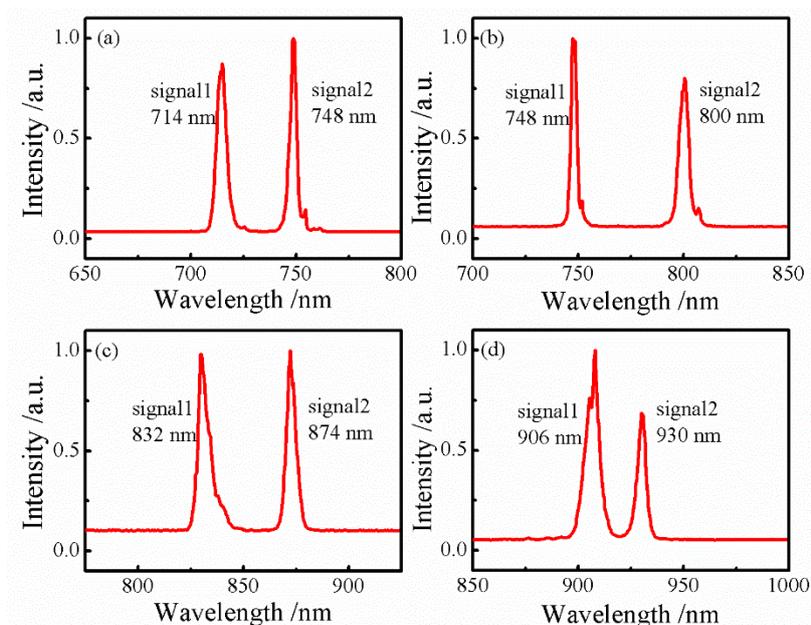


图 3.49 信号光双波长光谱调谐曲线

Fig. 3.49 The typical dual signal spectrum of BiBO OPO

最后我们通过转动 BIBO 晶体的角度和调节腔长，获得的信号光双波长输出范围在 700-1000 nm。如图 3.49 所示，在整个光谱调谐范围内，双波长间隔最大时出现在 695 nm 和 964 nm，最小时为 906 nm 和 930 nm。当双波长调谐范围在 710 nm-930 nm 之间时，输出功率均在 500 mW 以上，但是在 930-1000 nm 范围内，输出功率明显降低，平均值仅为 250 mW。这是因为信号光在这个输出范围

内比较靠近简并点，信号光和闲频光在腔内形成了竞争机制导致输出功率降低。在 OPO 双波长实验中，还观察到了其他非线性光学现象，例如信号光倍频。如图 3.50 所示，当双波长的运转在 790 nm-840 nm 时，可以清楚的看到 C1、C2、HR1 和 OC 上出现了明显的蓝光。

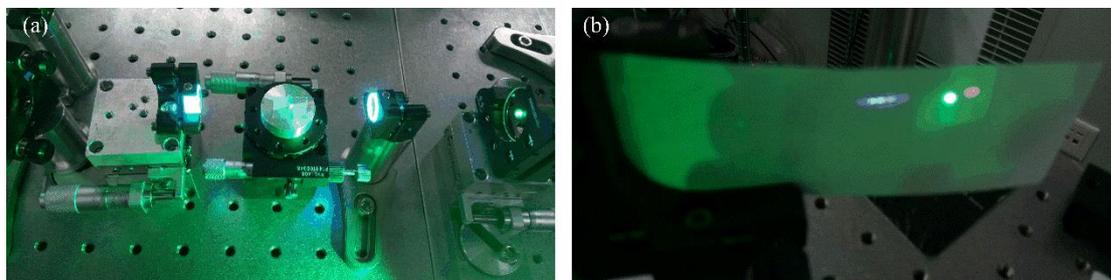


图 3.50 信号光双波长运行实拍

Fig. 3.50 Real picture of the dual-signal wavelength OPO

3.4 本章小结

本章首先介绍了 OPO 中常用的几种非线性晶体，然后从理论上研究了飞秒 OPO 过程中限制晶体长度的各种因素，其中群速度失配和群速度色散最为重要。利用全固态 Yb:KGW 飞秒激光器作为泵浦源，在泵浦光平均功率 7 W，脉冲宽度 100 fs，中心波长 1.03 μm ，重复频率 75.5 MHz 的条件下，结合 KTA 和 KTP 晶体，通过 OPO 方式最终实现了近红外-中红外的高功率、宽带可调谐飞秒激光输出，其中信号光波长调谐范围在 1.41-1.71 μm ，最高平均输出功率为 2.32 W，对应的闲频光光谱调节范围在 2.61-3.84 μm ，最高平均功率为 1.31 W，整体转换效率高达 51.8%。利用啁啾镜在腔内进行色散补偿，信号光在 1.52 μm 时脉宽最短，为 129 fs，接近傅里叶极限变换脉宽。同时以全固态泵浦源作为基频光源，利用 LBO 晶体进行了倍频实验，515 nm 倍频光平均功率为 3.75 W，转换效率高达 53.6%。基于 515 nm 的飞秒绿光泵浦源，结合 BIBO 晶体，分别研究了 OPO 在重复频率 75.5 MHz、151 MHz 和 755 MHz 条件下的飞秒激光输出特性，实验中发现不同的重复频率下，信号光和闲频光的光谱调谐范围、平均输出功率和脉冲宽度等并没有明显差别，但是随着重复频率的提升，OPO 腔长容忍量和功率稳定性大幅度减小。同时在重复频率 75.5 MHz 条件下，通过腔外倍频方式获得了 350-488 nm 的可调谐紫外飞秒激光输出，整体输出功率在 50 mW 以上。最后研究了 BIBO-OPO 的信号光双波长输出特性，从理论上分析了双波长的产生

过程,通过平衡信号光与泵浦光之间的相位匹配和群速度失配,最终实现了 700-1000 nm 的可调谐双波长飞秒激光输出。

这种高功率、高重频、宽带可调谐的紫外-中红外飞秒激光光源在光谱探测、生物成像、激光加工、军事对抗等领域有着巨大的应用潜力和重要的研究价值。

第4章 飞秒激光同步泵浦的 Ti:sapphire 振荡器实验研究

高重频的可见光-近红外飞秒激光光源在光学频率梳、相干合成、高次谐波产生等领域有着广泛的应用。1991年, D. E. Spence 等人首次利用克尔透镜锁模方式, 在 Ti:sapphire 激光器中实现了 60 fs 的锁模激光输出。克尔透镜锁模 Ti:sapphire 激光器的出现, 是飞秒激光器重要的里程碑, 推动了飞秒激光技术飞速发展。Ti:sapphire 晶体由于其自身具有优良的光学物化性质, 被广泛的应用于超短脉冲激光器中, 开创了全固态超快领域的新纪元。随后的时间里, 人类利用多种方式来改善 Ti:sapphire 激光器的输出特性, 例如缩短脉冲宽度, 提高重复频率、单脉冲能量等。最初实现 Ti:sapphire 锁模的办法主要有种子注入、声光锁模和被动锁模等。利用克尔透镜锁模方式, 通过合理的设计腔内色散补偿, 可以获得光学周期量级的飞秒激光脉冲。利用可饱和吸收体辅助锁模方式, 同样可以获得 Ti:sapphire 飞秒激光输出, 同时可以实现锁模状态的自启动。近几年来, 采用同步泵浦的方式实现自启动的 Ti:sapphire 飞秒激光输出备受人们青睐。2005年, Richard Ell 等人利用锁模 Nd:YVO₄ 皮秒激光器倍频后的绿光作为泵浦源, 实现了 Ti:sapphire 亚 10 fs 的锁模激光输出。2017年, Didenko 等人利用掺 Yb³⁺ 的全固态飞秒振荡器作为泵浦源, 利用同步泵浦的方式实现了 Ti:sapphire 飞秒激光输出。与连续光和皮秒光泵浦相比, 飞秒激光泵浦在获得了同样激光输出参数下, 还具有以下优势: (1) 不需要在腔内引入扰动或者使用可饱和吸收体, 就可以实现自启动的锁模飞秒激光输出; (2) 采用连续光作为泵浦源时, 通常采用腔内倍频的方式获得泵浦 Ti:sapphire 的绿光, 而连续光倍频时转换效率较低。而对于飞秒激光, 较高的峰值功率导致了高的倍频转换效率, 从而减轻了前面近红外基频光的负担, 节约了成本; (3) 与皮秒光泵浦相比, 飞秒激光泵浦可以获得更高的锁模精度, 这时 Ti:sapphire 激光和泵浦源的重复频率差别在毫赫兹量级, 对应的腔长差别在微米量级。(4) 对于产生高重频的飞秒激光, 飞秒激光泵浦可以提高自启动实现方式, 当重复频率在几百 MHz 到几个 GHz 范围内, 飞秒激光泵浦可以克服高重频条件下的自启动模式较弱的缺点。对于重复频率在 GHz 的 Ti:sapphire 激光器, 由于腔长尺寸比较短, 因而限制了其谐振腔内部的元器件种类和数量, 同时腔内的单脉冲能量比较低, 不利于实现最初的克尔透镜锁模,

其次，当使用 SESAM 时容易在谐振腔内出现调 Q 锁模，对 SESAM 造成损伤。采用飞秒泵浦可以有效地避免上述问题，通过匹配 Ti:sapphire 激光器和泵浦源的腔长，就可以实现自启动的锁模激光输出；（5）由于飞秒泵浦光和 Ti:sapphire 的重复频率和相位是锁定的，可以把飞秒泵浦的 Ti:sapphire 激光器作为光参量啁啾脉冲放大器（Optical Parametric Chirped-pulse Amplification, OPCPA）装置的前级。综上所述，采用飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 的方式可以获得高重频、自启动的锁模飞秒激光，这种自启动、高重频的飞秒激光在科研领域有着巨大的应用潜力。

本章以 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器倍频后的 515 nm 绿光作为泵浦源，结合 Ti:sapphire 增益介质，采用同步泵浦的方式实现了自启动的 Ti:sapphire 锁模飞秒激光输出。在 3.6 W 的泵浦功率下，获得的锁模平均功率为 256 mW，脉冲宽度为 12.7 fs，光谱带宽 156 nm。Ti:sapphire 振荡器的腔长为 0.993 m，对应的重复频率为 151 MHz，为泵浦源重复频率的 2 倍。

4.1 飞秒激光同步泵浦锁模机制

在平面波近似条件下，泵浦光脉冲和产生的飞秒脉冲在 Ti:sapphire 晶体内相互作用时，可以用一个非线性薛定谔方程来描述激光脉冲的线性和非线性传输过程[19]：

$$\frac{\partial A_g}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} A_g + k_1(\omega_g) \frac{\partial A_g}{\partial t} + \frac{ik_2(\omega_g)}{2} \frac{\partial^2 A_g}{\partial t^2} = ir_g |A_g|^2 A_g + 2ir_g |A_p|^2 A_g \quad (4-1)$$

其中， A_g 和 A_p 分别表示 Ti:sapphire 激光和泵浦光在慢变近似条件下的光场振幅， k_1 和 k_2 分别代表频率为 ω_g 时的二阶、三阶群速度色散系数， α 代表非共振介质吸收系数， r_g 是非线性系数，与 A_g 和 A_p 有关。方程右边第一项代表 Ti:sapphire 激光脉冲的自相位调制（self-phase modulation, SPM），第二项代表互相位调制（cross-phase modulation, XPM）。公式（4-1）只有在一些假定条件下才能成立，在这里忽略了 Ti:sapphire 晶体对泵浦光脉冲造成的展宽作用。在忽略了损耗项后，可以得到在泵浦光振荡影响下的瞬时频率 $\delta\omega_{\text{cpm}}$ 的表达式

$$\delta\omega_{\text{cpm}} = -2r_g \frac{\partial |A_p|^2}{\partial t} z = -\frac{n_2 \omega_g}{c} \frac{\partial I_p}{\partial t} z \quad (4-2)$$

其中, I_p 是泵浦光功率, n_2 代表非线性折射率, 从公式 (4-2) 可以看出, 泵浦光与 Ti:sapphire 激光在晶体内的相互作用直接造成了后者相速度的降低, 且与泵浦光功率成正比, 最终改变了 Ti:sapphire 激光的脉冲宽度和光谱的中心频率。如图 4.1 所示[19], 点画线代表泵浦光的光强 I_p 随着群速度 U_p 的变化曲线, 虚线代表 Ti:sapphire 激光脉冲的相速度, 其中 $V_g = V_{g0} + \Delta V_g(I_p)$ 。图中垂直箭头代表脉冲在时间上的变化趋势。假设刚开始 Ti:sapphire 激光在晶体中位于泵浦光前方, 在泵浦光的影响下它的脉冲后沿将变慢, 脉冲被展宽, 并且包含一个负啁啾, 随着在晶体中的传播距离的增加, 其载波频率逐渐减小。类似的, 假设刚开始 Ti:sapphire 激光在晶体中落后于泵浦光, 它同样会获得一个负啁啾, 但实际产生的效果是 Ti:sapphire 激光脉冲被压缩了, 同时随着晶体中的传播距离的增加, 其载波频率逐渐变大。

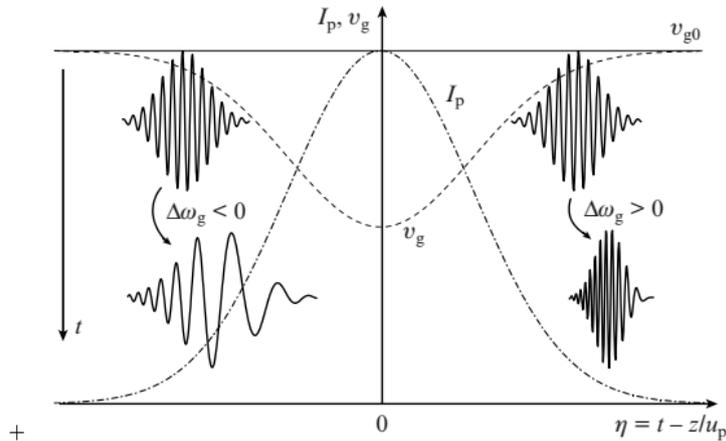


图 4.1 在泵浦光影响下 Ti:sapphire 激光的在时域上和频域上的变化[19]

Fig. 4.1 Variation in duration and frequency of the generated pulse in the Ti:sapphire crystal under the influence of the pump field

根据前面的分析, 由于泵浦光的影响, Ti:sapphire 激光脉冲的载波频率会发生改变, 公式 (4-2) 在色散理论的一级近似条件下会得出群速度发生变化, 最终导致脉冲在腔内往返时间发生变化, 引起的色散量可以表示为

$$\left. \frac{\partial U}{\partial \omega} \right|_{\omega=\omega_g} = -\frac{U^2}{l} \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} > 0 \quad (4-3)$$

式中 l 代表 Ti:sapphire 激光器的腔长, 可以看出总色散量为负值。Ti:sapphire 激光脉冲的群速度 U 变化量为

$$\Delta U = -\frac{n_2 \omega_g}{c} Z \frac{dI_p}{dt} \frac{\partial U}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\omega_g} \quad (4-4)$$

从公式 (4-4) 中可以看出, 假设刚开始 Ti:sapphire 激光稍微落后于泵浦光, 并且与后者脉冲的下降沿重叠时, Ti:sapphire 激光的光谱将会变窄, 同时群速度增加, 因此 Ti:sapphire 激光脉冲下一次在谐振腔中传播时, 在时域上与泵浦光之间的延时缩短, Ti:sapphire 激光脉冲在谐振腔内多次往返的过程中, 其与泵浦光得到充分的相互作用。经过腔内多次往返后, Ti:sapphire 激光脉冲领先于泵浦光, 这时其与泵浦光的上升沿重合, 导致其群速度减小, 最终其与泵浦光在时域上获得了相对稳定的时间延时, 这时两个脉冲在时域上的重合程度最大, Ti:sapphire 激光脉冲载波中心频率将不再移动, 重复频率被锁定, 即实现了和泵浦源的完全同步。但是受到周围环境的扰动, Ti:sapphire 激光器的腔长会发生微小的改变, 因此腔长存在一定的容忍量, 只有在容忍量范围内, 才可以实现自启动的锁模飞秒激光输出。

飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 产生锁模脉冲过程中, 除了要考虑自相位调制作用以外, 互相相位调制作用更为重要。这是因为采用飞秒激光作为泵浦源时, 泵浦光的峰值功率比较高, Ti:sapphire 激光实现锁模来源于泵浦光和锁模激光相互叠加引起的非线性耦合效应。泵浦光和 Ti:sapphire 激光的互相相位调制作用引起的三阶非线性效应使得二者在负色散区域条件下, 在时域上“互相吸引”。

4.2 飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 锁模激光器实验研究

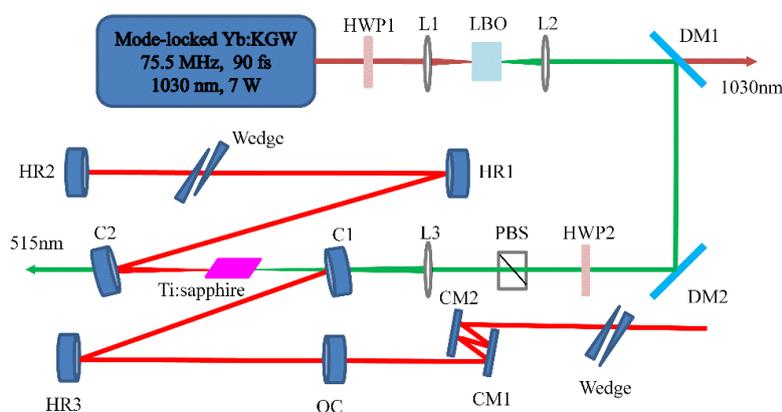


图 4.2 飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 实验装置示意图

Fig. 4.2 Experimental setup of the Ti:sapphire laser

图 4.2 是飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 激光器的实验装置，利用 3.6 W 的 515 nm 绿光作为泵浦源，透镜 L3 的焦距 $f=75$ mm，Ti:sapphire 激光器腔型为线形腔，C1 和 C2 为凹面镜，焦距 $f=100$ mm，双面镀有 550-1100 nm 的高反介质膜 ($R>99.9\%$)，其中 C1 还镀有对 515 nm 的增透膜 ($T>99\%$)。HR1、HR2 和 HR3 为平面高反镜，镀有对 620-1080 nm 的高反膜。为了减少腔内材料引起的色散，选用一个比较薄的 OC 作为输出镜，输出率为 3%，被放置在一维精密平移台上，用来匹配腔长。Ti:sapphire 晶体的尺寸为 $4\text{ mm}\times 4\text{ mm}\times 4\text{ mm}$ ，其通光面按照布儒斯特角切割，为了达到较好的散热效果，我们将晶体用铝箔包裹后固定在紫铜热沉上，通过水冷将温度控制在 12°C 。Ti:sapphire 激光器的腔长为 0.993 m，对应的重复频率为 151 MHz，是泵浦源的 2 倍。

利用软件，我们模拟了 Ti:sapphire 谐振腔内的激光模式分布，如图 4.3 所示，Ti:sapphire 晶体内的束腰半径为 $28\ \mu\text{m}\times 28\ \mu\text{m}$ ，略大于泵浦光光斑，形成了比较好的模式匹配。同时对于 Ti:sapphire 晶体，在提供增益的同时又产生克尔透镜效应，晶体的自聚焦使晶体上的激光的光斑大于泵浦光光斑时，形成一个软光阑，从而起到饱和吸收体的作用。

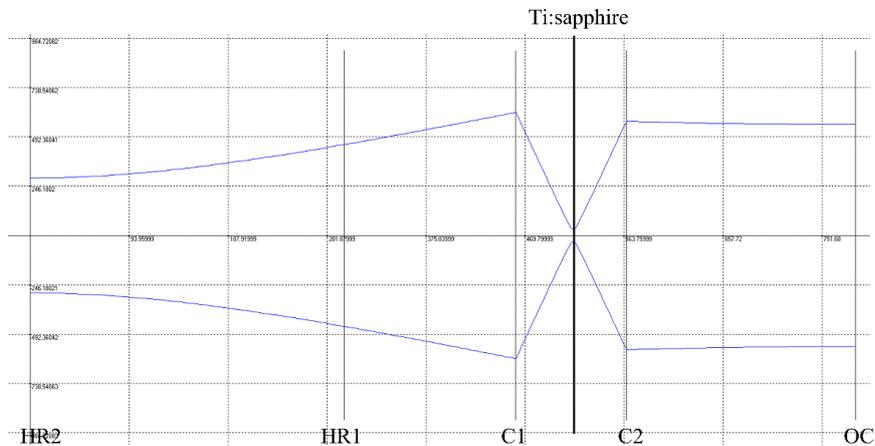


图 4.3 Ti:sapphire 振荡器腔内模式分布

Fig. 4.3 Cavity distribution of Ti:sapphire

首先我们实现了 Ti:sapphire 连续光输出，通过优化腔内结构和调节端镜，使连续光输出的功率最大。之后改变 OC 的位置，使得 Ti:sapphire 谐振腔的腔长与泵浦源相匹配，即腔长为泵浦源一半时，可以实现稳定的自启动的 Ti:sapphire 锁模激光输出。对于飞秒激光同步泵浦的 Ti:sapphire 激光器，可以借鉴 OPO 的腔长同步来分析。可以利用一个低重频的飞秒激光泵浦 Ti:sapphire 从而获得高重频

的自启动飞秒激光输出，Ti:sapphire 的腔长与泵浦源的腔长要满足条件 $L_T=L_p/M$ (M 为整数)，其中 L_T 和 L_p 分别表示 Ti:sapphire 和泵浦源的腔长。类似的，可以用高重频的飞秒激光泵浦 Ti:sapphire 来获得低重频的自启动飞秒激光输出。如图 4.5 所示，当 Ti:sapphire 实现稳定锁模输出后，示波器上显示的 Ti:sapphire 锁模脉冲序列与泵浦光匹配的比较精确，不同之处在于重复频率是泵浦源的 2 倍。同时可以看出，Ti:sapphire 锁模脉冲序列比较平稳，反映出锁模状态比较稳定。值得注意的是，Ti:sapphire 锁模一旦建立，改变 OC 的前后位置，在几十微米范围内，对锁模状态不会造成影响。但是，受到周围空气的扰动，锁模状态只能维持几个小时。幸运的是，当锁模状态消失以后，只需要轻微改变 OC 的位置就可以重新获得自启动的锁模激光输出。为了进一步反映 Ti:sapphire 锁模激光的稳定性，用商用频谱仪测量了锁模脉冲频谱，如图 4.6 所示，当扫描分辨率设定在 1 kHz 时，频谱曲线的峰值出现在 151 MHz，此时信噪比高达 78 dB，并且没有出现其他频率的调制信号。同时也测量了锁模脉冲在 0-1 GHz 范围内的频谱，当分辨率为 100 kHz 时，获得的频谱曲线为一系列比较平稳的梳齿，这说明激光器处于比较稳定的锁模状态。

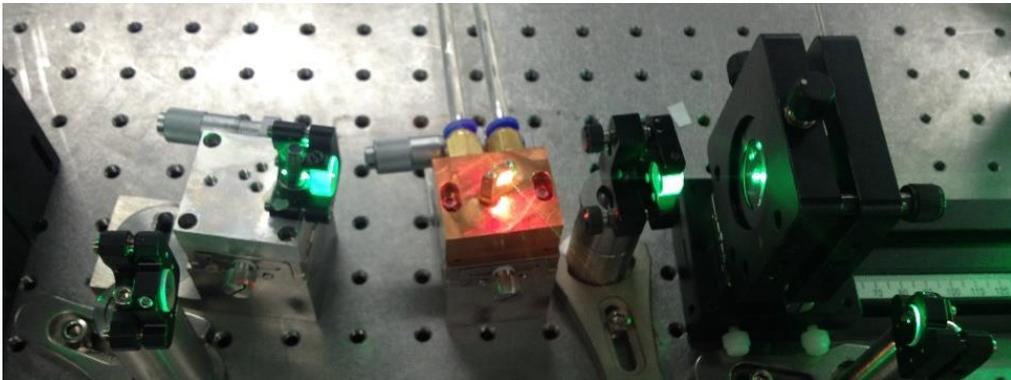


图 4.4 Ti:sapphire 振荡器运行实拍

Fig. 4.4 Real picture of Ti:sapphire laser

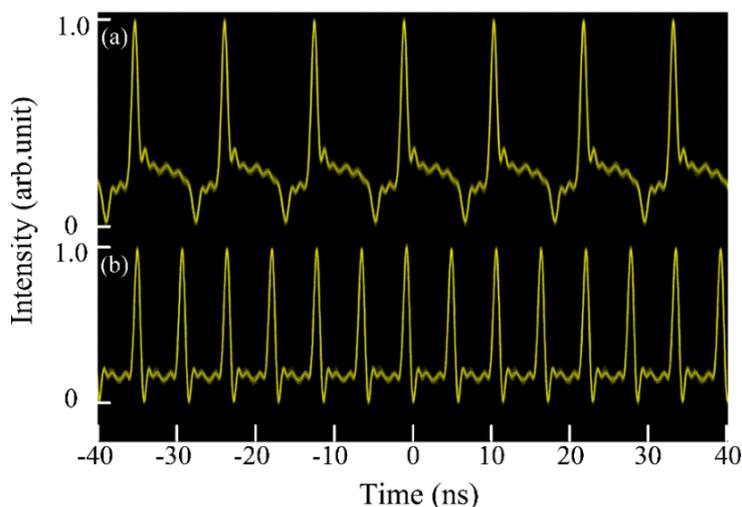


图 4.5 Ti:sapphire 激光器与飞秒泵浦源的锁模脉冲序列(分辨率为 10 ns/div)

Fig. 4.5 Mode-locked pulse trains at 10 ns/div:

(a) mode-locked Yb:KGW laser; (b) mode-locked Ti:sapphire laser

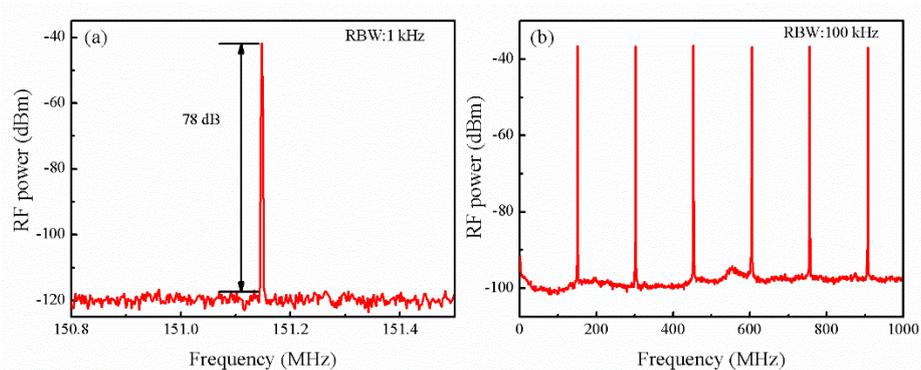


图 4.6 Ti:sapphire 锁模激光器频谱序列

Fig. 4.6 Typical radio frequency spectrum of the Ti:sapphire laser. (a) RF spectrum of the fundamental beat note with the RBW of 1 kHz;

(b) wide spectrum of 1 GHz with the RBW of 100 kHz.

对于飞秒激光同步泵浦的 Ti:sapphire 锁模激光器，如果 Ti:sapphire 激光器的腔长和泵浦源的腔长完全匹配，那么前者锁模脉冲的频谱序列中不会含有其他的调制频率。而实际过程中，二者的腔长并不能实现完全匹配，即重复频率不可能完全一致。如图 4.7 所示，在高分辨率条件下，当 RBW 为 100 Hz 时，可以发现在基频信号 151 MHz 两侧出现了其他频率的调制信号，这是由泵浦光和 Ti:sapphire 激光器重复频率不匹配导致。从图中可以看出，151 MHz 时的信噪比为 70 dB，而两侧的调制信号约为 18 dB，Ti:sapphire 激光器重复频率的失谐量为 6 kHz，对应腔长的失谐量为 39 μm ，与前面实验结果相吻合。经过类比发现，飞秒同步泵浦 Ti:sapphire 腔长的失谐量要比皮秒泵浦小的多。

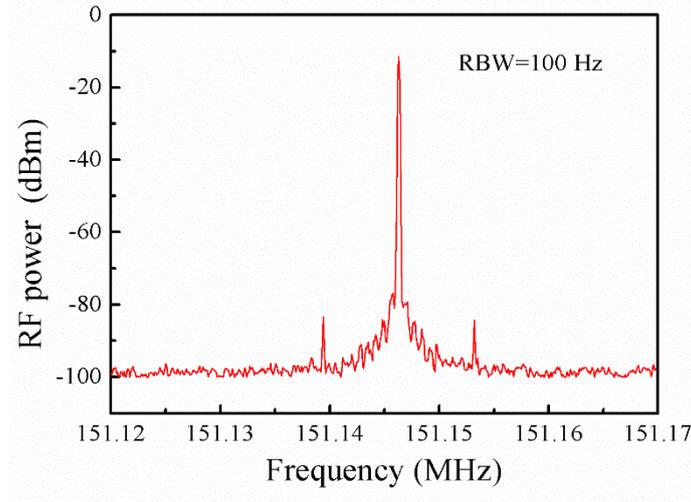


图 4.7 分辨率为 100 Hz 时，Ti:sapphire 锁模基频信号

Fig. 4.7 Radio frequency spectrum of the mode-locked Ti:sapphire laser with RBW of 100 Hz.

自从 Ti:sapphire 飞秒激光器出现以来，人们尝试各种色散补偿方式来压缩飞秒激光的脉冲宽度。对于飞秒激光脉冲，假设初始状态下是理想的高斯型脉冲，其时域和频域的表达式分别为[2]

$$E(t) = \exp\left[-\frac{t^2 \cdot 2\ln 2}{\tau^2} - iC \frac{t^2 \cdot 2\ln 2}{\tau^2} + i\omega_0 t\right] \quad (4-5)$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int E(\omega) \exp[-i\omega t] d\omega \quad (4-6)$$

其中 τ 为高斯脉冲的脉冲宽度， ω_0 为中心频率， C 为初始啁啾量参数，由傅里叶极限变换可以得到

$$\Delta\omega_0 \cdot \tau = 4\ln 2 \sqrt{1 + C^2} \quad (4-7)$$

$$C = \sqrt{\left(\frac{\pi C \Delta\lambda \tau}{2\lambda_0^2 \ln 2}\right)^2 - 1} \quad (4-8)$$

其中， $\Delta\lambda$ 为光谱谱宽， λ_0 为中心波长，考虑到材料引起的色散，相位项 $\phi(\omega)$ 真正包含了超短脉冲的色散信息。可以将 $\phi(\omega)$ 在中心频率 ω_0 处进行泰勒展开

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \phi'(\omega)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} \phi''(\omega)(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!} \phi'''(\omega)(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (4-9)$$

其中 $\phi(\omega)$ 的各阶导数分别代表群速度色散 (GVM)，群延迟色散 (GDD)，三阶色散 (TOD)。

在飞秒激光器中,对脉冲相位造成影响的因素主要来自于谐振腔内各个介质引起的材料色散。为了获得较短的飞秒激光输出,需要考虑腔内增益介质 (Ti:sapphire 晶体),空气,色散补偿元件 (啁啾镜,尖劈,棱镜等),输出镜 OC 引起的材料色散。表 4-1 所示给出了上述几种材料的折射率方程。

表4.1 材料的折射率方程

材料	折射率方程
Ti:sapphire	$n_0^2 - 1 = \frac{1.4313493\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0726631^2} + \frac{0.65054712\lambda^2}{\lambda^2 - 0.1193242^2} + \frac{5.3414021\lambda^2}{\lambda^2 - 18.028251^2}$
熔石英 (Fused Silica)	$n_0^2 - 1 = \frac{0.0691663\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0684043^2} + \frac{0.4079426\lambda^2}{\lambda^2 - 0.1162414^2} + \frac{0.8974794\lambda^2}{\lambda^2 - 9.896161^2}$
氟化钡 (BaF ₂)	$n_0^2 = 2.4185699 - 9.0345952 \times 10^{-3} \lambda^2 + \frac{1.5191698 \times 10^{-2}}{\lambda^2} + \frac{5.9590651 \times 10^{-4}}{\lambda^4} - \frac{4.5536610 \times 10^{-5}}{\lambda^6} + \frac{3.7667724 \times 10^{-6}}{\lambda^8}$
空气	$(n-1) \times 10^8 = 8060.51 + \frac{2480990}{132.274 - \frac{1}{\lambda^2}} + \frac{17455.7}{32.92957 - \frac{1}{\lambda^2}}$

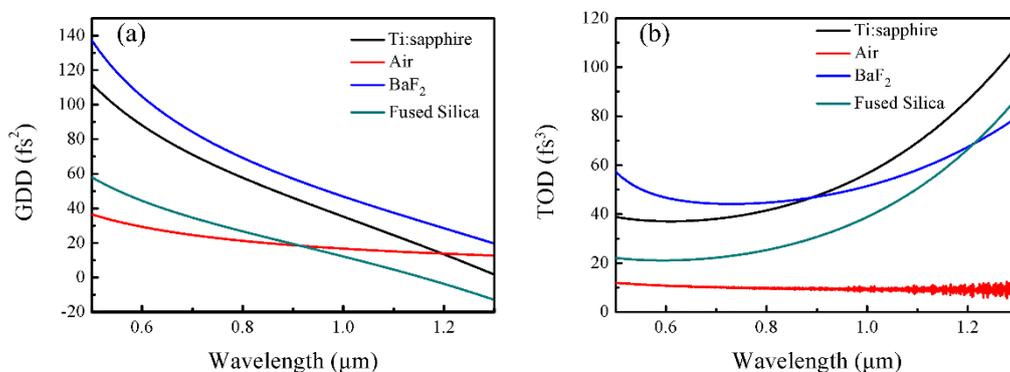


图 4.8 不同材料对应的单位长度色散曲线: (a) GDD; (b) TOD

Fig. 4.8 The dispersion of different material: (a) GDD; (b) TOD

根据材料的折射率方程,计算可以得到单位长度内各材料所引起的 GDD 和 TOD,如图 4.8 所示,对于 Ti:sapphire 晶体,其中心波长通常在 800 nm 附近,1 mm 长的晶体引入的色散量为 58.5 fs²。实验中 Ti:sapphire 晶体的长度为 4 mm,引入的材料色散约为 240 fs²。Ti:sapphire 激光器腔长为 0.993 m,空气引入的材料色散接近 21.2 fs²。为了获得脉冲宽度接近 10 fs 的超短脉冲激光,我们在腔内加入了啁啾镜,用来补偿谐振腔内的 Ti:sapphire 晶体、尖劈对以及空气引起的二

阶色散。其中 C1 和 C2 在 720-1000 nm 范围内提供色散量平均值为 -70 fs^2 ，HR2 和 HR3 在 640-1000 nm 提供的色散平均值为 -100 fs^2 ，这样可以使腔内的净色散以负色散为主，负色散量大约在 -30 fs^2 。为了获得接近傅里叶极限变换的飞秒脉冲，采用了腔外色散补偿方式，利用一对啁啾镜和尖劈，通过改变啁啾镜上激光的反射次数和尖劈对的插入量，可以进行精确的色散补偿。采用腔外压缩的另一个好处在于，在使用干涉自相关仪测量脉宽时，自相关仪内的分束片、倍频晶体等也会引入必要的材料色散，利用腔外压缩可以起到预补偿作用。

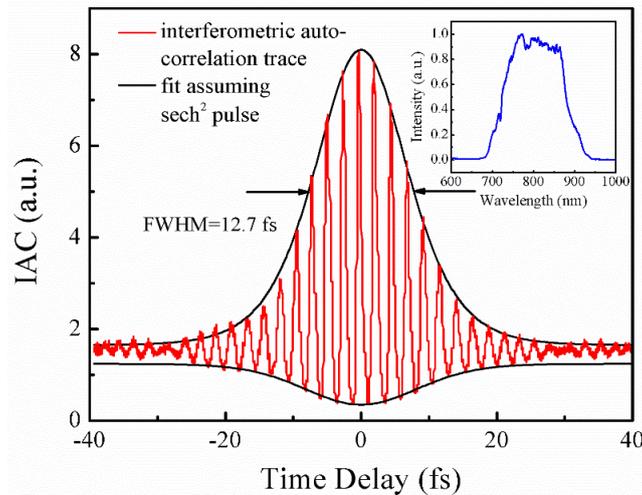


图 4.9 Ti:sapphire 激光脉冲干涉自相关曲线和对应的光谱曲线

Fig. 4.9 Interferometric autocorrelation traces of the compressed 12.7 fs mode-locked pulse (red curve) with a sech^2 fitting (black curve) under 3% transmissions. Inset: corresponding the spectrum centered at wavelength of 811 nm.

利用商用干涉自相关仪 (Femtolasers V1.65) 测量了 Ti:sapphire 激光的脉冲宽度。如图 4.9 所示，其中红色实线是实验测量曲线，黑色实线为双曲正割拟合结果，可以看出信号强度两边比较对称，且与背景强度之比接近 8:1。红色实线半高全宽以上的条纹数约为 10 个，条纹间隔为 9 个，Ti:sapphire 中心波长在 811 nm 时对应的条纹时间间隔为 2.7 fs，假设输出激光脉冲为双曲正割型，这时条纹的半高宽与脉冲时间间隔之比为 1.897，对应的脉冲宽度约为 12.7 fs。同时用光谱仪测量了此时的光谱，光谱比较平坦，覆盖范围在 690-930 nm，半高宽为 156 nm，光谱支持的傅里叶极限变换脉宽为 7.6 fs。没有得到极限变换脉宽的原因一方面来自于测量方面的引起的误差，另一方面是腔内的色散补偿并没有达到理想状态，激光脉冲还存在一定的啁啾。

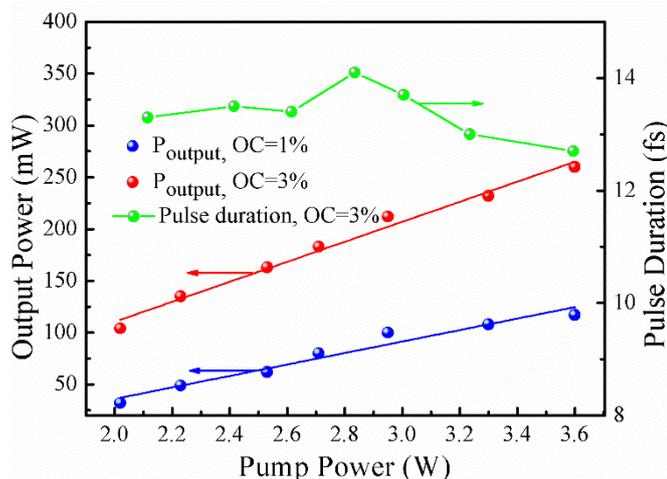


图 4.10 Ti:sapphire 激光输出功率和脉冲宽度随泵浦光功率变化曲线

Fig. 4.10 Mode-locked output powers and pulses duration of Ti:sapphire as a function of the pump power.

我们测量了不同泵浦光功率下 Ti:sapphire 激光的锁模输出功率，如图 4.10 所示，随着泵浦光功率增加，锁模输出功率呈线性增长趋势，当 OC 的输出率为 3% 时，在 3.6 W 泵浦光功率条件下，获得的锁模输出功率最大，为 256 mW，转换效率约为 7%。随后我们降低泵浦光功率，得到的泵浦光阈值为 2.02 W。泵浦光功率在 2.02 W 以上时，均可以实现自启动的 Ti:sapphire 锁模激光输出，但是随着泵浦光功率的降低，其腔长的容忍量进一步减小，从几十微米缩短到十几微米。当泵浦光功率低于 2.2 W 时，无法实现 Ti:sapphire 激光锁模。在不同泵浦光功率条件下测得了 Ti:sapphire 激光的脉冲宽度，锁模状态下测量得到的脉冲宽度范围在 12.7-13.3 fs。同时采用了 1% 的 OC 进行了对比试验，这时最高锁模输出功率为 117 mW，尽管泵浦阈值由之前的 2.02 W 下降到 1.8 W，但是锁模激光的输出光谱并没有明显的展宽，根据测不准原理可以初步判断，脉冲宽度并没有明显缩短。这说明影响锁模激光脉冲宽度的主要因素是腔内色散补偿，合理选择啁啾镜的镜片参数尤为重要。最后测量了 Ti:sapphire 锁模激光输出功率的稳定性，如图 4.11 所示，商业产品 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器由于其内部包含电路反馈控制系统，其锁模输出功率非常稳定，2 小时内的功率抖动 RMS 值为 0.1%。受益于这个优良的泵浦源，Ti:sapphire 激光器锁模功率抖动 RMS 值为 0.5%，造成功率不稳定因素主要的周围空气扰动，腔长同步精度等。接下来我们准备将 Ti:sapphire 激光器进行密封，同时在腔内配备电控反馈装置，用来实现 Ti:sapphire 激光器和泵浦源的腔长精确同步。

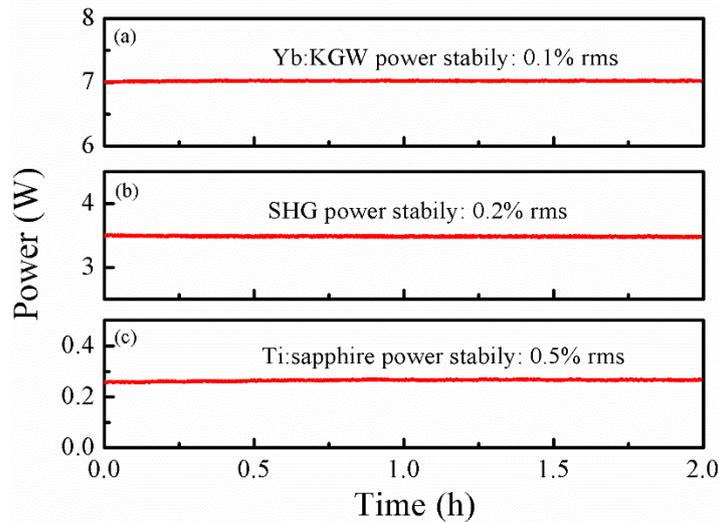


图 4.11 功率稳定性: (a) Yb:KGW; (b) SHG; (c) Ti:sapphire

Fig. 4.11 Power stability of the output power in 2 h: (a) Yb:KGW; (b) SHG; (c) Ti:sapphire

4.3 本章小结

本章首先介绍了同步泵浦 Ti:sapphire 激光器的研究进展, 比较了连续光、皮秒光和飞秒光作为泵浦源时各自的优缺点, 接下来从理论上解释了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 的锁模机制, 通过实验最终获得了自启动的 Ti:sapphire 锁模激光输出。在 3.6 W 的泵浦光功率下, 获得的最高锁模功率为 256 mW, 转换效率为 7%。在使用啁啾镜和尖劈对进行色散补偿的条件下, 获得的锁模激光脉冲宽度为 12.7 fs, 光谱中心波长为 811 nm, 覆盖范围在 690-930 nm, 光谱带宽为 156 nm。Ti:sapphire 激光器的腔长为 0.993 m, 对应的重复频率为 151 MHz, 为泵浦源的 2 倍。与连续光、皮秒光相比, 利用飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire, 可以克服 Ti:sapphire 激光器在高重复频率条件下难以锁模的缺点, 同时无需在腔内引入扰动或是使用可饱和吸收体, 只需要精确匹配 Ti:sapphire 激光器和泵浦源的腔长, 就可以实现高重频的自启动飞秒激光输出。这种高重频、自启动的 Ti:sapphire 激光振荡器在光学频率梳、超短脉冲相干合成、OPCPA 等领域有着广泛的应用前景。

第 5 章 高平均功率掺 Yb³⁺晶体全固态飞秒振荡器的研究

激光作为上世纪最伟大的发明之一,已经成为光学领域中一个重要的发展方向。早在 1964 年,人们就利用锁模方式产生了超短脉冲激光。随着全固态超短脉冲激光器的蓬勃发展,产生了一系列用于产生超快激光的增益介质。这些增益介质需要满足一些必备条件,首先必须有合适的尖锐荧光谱线来实现激光跃迁,同时具有比较宽的荧光发射谱线,其次为了实现激光跃迁,需要有足够高的量子效率,减小激光能级的寄生损耗。最后还需满足具有较高的增益这一条件。在超短脉冲激光领域,除了 Ti:Sapphire 激光器之外,半导体激光器的发展也对超短脉冲激光的进步起到了巨大的推动作用,使得超短脉冲激光器逐渐向全固化、小型化发展。近年来,受益于高亮度、低成本的激光二极管(LD)的迅速发展,同时伴随着可饱和吸收体以及晶体与材料生长技术的日益成熟,全固态超短脉冲激光器迎来了迅速发展的新时代。Yb³⁺离子掺杂的激光材料是近年来发展迅速的超短脉冲激光增益介质之一,这类材料通常具有比较宽的荧光发射谱线,可以支持百飞秒、甚至百飞秒以下的超短脉冲激光产生。同时,增益介质的吸收峰在 980 nm 或者 940 nm 附近,可以利用半导体激光器直接泵浦。在众多掺 Yb³⁺晶体中,Yb:KGW 和 Yb:CGA 具有优异的光学、热力学等综合性能,是目前发展比较成熟的两种激光增益介质,为实现高功率的超短脉冲激光提供了强有力的支持。

本章首先对 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体作了基本介绍,接下来利用商用 980 nm LD 作为泵浦源,采用 SESAM 被动锁模方式开展了 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体锁模激光产生的实验研究,最终实现了平均输出功率 7.6 W,脉冲宽度 160 fs,单脉冲能量 97 nJ,峰值功率 0.606 MW,重频频率 78 MHz 的锁模飞秒激光输出。

5.1 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体特性

Yb:KGW (Yb:KGd(WO₄)₂, 掺镱钨酸钪钾)属于钨酸盐晶体,是由 Yb³⁺离子取代部分的 Cd³⁺在 KGW 晶体中的位置。该晶体类型属于单斜晶体[145],空间点群为 C2/c。Yb:KGW 晶体比起其他类型晶体虽然起步较晚,但是其发展非常迅速,目前国内外对该晶体都有一定的报道。2000 年, Brunner 等人利用 Yb:KGW 晶体成功的实现了脉冲宽度 176 fs,平均功率为 1.1 W 的飞秒激光输出

[20]。随后几年里，国际上兴起了研究 Yb:KGW 飞秒激光器的热潮。Yb:KGW 晶体特性如下[145]:

热膨胀系数 α : $a=4\times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$, $b=3.6\times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$, $c=10^{-6} / ^\circ\text{C}$;

导热系数: $K_a=2.6 \text{ W/mK}$, $K_b=3.8 \text{ W/mK}$, $c=3.4 \text{ W/mK}$;

密度: 7.27 g/cm^3 ;

熔点: 1075°C ;

光谱透过范围: $0.35\text{-}5.5 \mu\text{m}$;

折射率: $n_g=2.037$, $n_p=1.986$, $n_m=2.033 @ 1.06 \mu\text{m}$;

激光发射谱: $1023\text{-}1060 \text{ nm}$;

上能级荧光寿命: 0.3 ms ;

吸收峰值和带宽: $\lambda=981 \text{ nm}$, $\Delta\lambda=3.7 \text{ nm}$;

吸收截面: $1.2\times 10^{-19} \text{ cm}^2$;

受激发射截面: $2.8\times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 。

掺杂浓度为 5% 的 Yb:KGW 晶体的吸收谱和发射谱如图 5.1 所示[146]。从图中可以看出，晶体的吸收峰主要集中在 940 nm 和 980 nm 附近，其中对于 980 nm 吸收峰，吸收带宽 $\Delta\lambda=3.7 \text{ nm}$ ，大于传统的 980 nm LD 发射光谱 ($\Delta\lambda\approx 2.5 \text{ nm}$)，因此可以使用 LD 直接泵浦。从 Yb:KGW 激光发射谱中可以看出，其中一条谱线与吸收谱线 981 nm 重合，尽管存在一定的吸收损耗，但是在 1002 nm 和 1030 nm 附近还存在两个比较强的发射峰，并且在 1030 nm 附近，光谱带宽比较宽，有利于实现亚 100 fs 激光脉冲的产生。

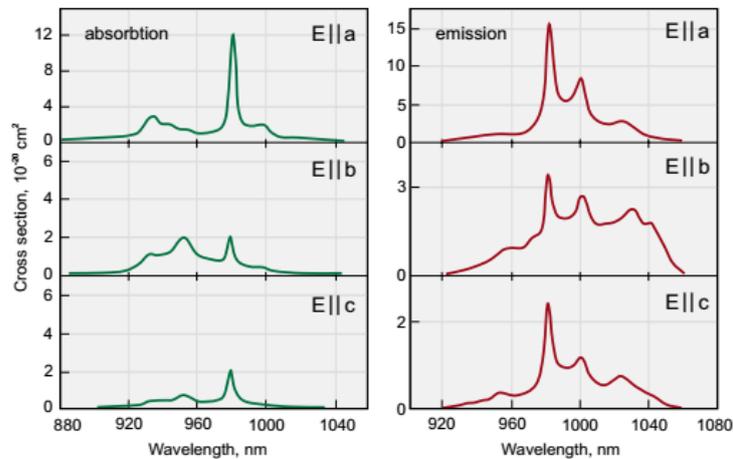


图 5.1 Yb:KGW 晶体沿主轴方向的吸收谱和发射谱[146]

Fig. 5.1 Absorption and emission spectrum of 5 at. % Yb:KGW

Yb:CGA (Yb:CaGdAlO₄, 掺镜铝酸钇钙) 属于铝酸盐晶体, 晶格结构为四方晶系[147]。其中 Ca³⁺和 Gd³⁺离子随机分布于八面体层之间, 掺入的 Yb³⁺离子在晶格位置中无序分布, 因此造成激光发射谱的非均匀展宽, 有利于实现超短脉冲激光的产生。同时 Yb:CGA 晶体具有良好的热力学性能, 是超快激光领域中不可多得的激光增益介质。Yb:CGA 晶体主要特性如下[147]:

热膨胀系数 α : $a=7.91 \times 10^{-6} / \text{K}$, $c=14.49 \times 10^{-6} / \text{K}$;

导热系数: $K_a=5.47 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $K_c=3.61 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$;

荧光寿命: 0.42 ms;

吸收截面/ $\times 10 \text{ cm}^2$: $1//a$, $2.7//c$;

吸收光谱和带宽: $\lambda=981 \text{ nm}$, $\Delta\lambda>5 \text{ nm}$;

激光发射谱半高宽: 约 80 nm;

发射截面: $0.75//a$, $0.25//c$ 。

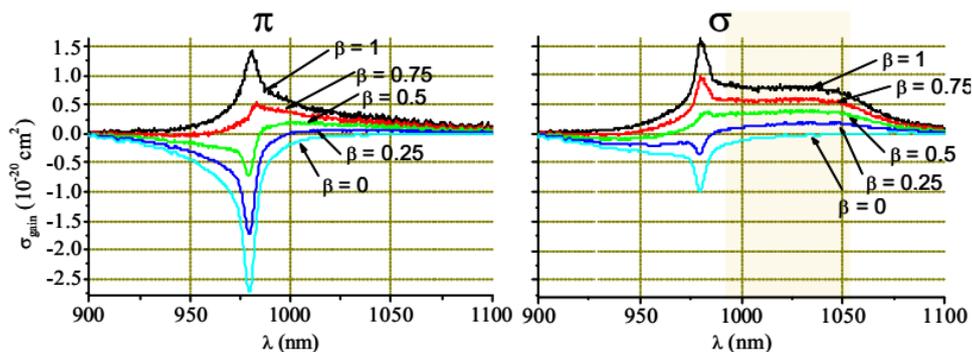


图 5.2 不同反转粒子数条件下的 Yb:CGA 晶体沿 π 和 σ 偏振方向的净增益截面[147]

Fig. 5.2 Absorption and emission cross sections in p and s polarizations

从图 5.2 中可以看出[146], 受益于 CaGdAlO₄ 基底材料的无序结构, Yb:CGA 晶体具有比较宽的荧光发射谱, 对于 2% 掺杂的 Yb:CGA 晶体, 在 990-1050 nm 范围内, σ 偏振方向的增益截面呈平滑趋势, 在超短脉冲激光领域具有较大的研究潜力。

5.2 高功率 Yb:KGW 被动锁模飞秒激光实验研究

实验中所采用的 Yb:KGW 晶体为立陶宛 EKSMa OPTICS 公司的商业产品, 掺杂浓度为 5 at.%, 尺寸为 $3 \times 3 \times 5 \text{ mm}^3$, 沿 Ng 轴切割, 两面均镀有 940-980 nm 和 1020-1070 nm 的增透膜。泵浦源为中心波长 980 nm 的光纤耦合式 LD 激光

器，光纤的芯径为 $100\ \mu\text{m}$ 。采用 1:2 的耦合聚焦透镜将泵浦光聚焦到 Yb:KGW 晶体上，聚焦后的光斑直径大约为 $200\ \mu\text{m}$ 。谐振腔为简单的平凹腔，其中 DM 为双色镜，对 $980\ \text{nm}$ 高透，对 $1020\text{-}1100\ \text{nm}$ 高反，C1 为凹面镜，曲率半径 $f=500\ \text{mm}$ ，镀有对 $1020\text{-}1100\ \text{nm}$ 高反的介质膜，HR 为平面高反镜，镀有对 $1020\text{-}1100\ \text{nm}$ 高反的介质膜，OC 为输出镜，输出率为 10%。为了使晶体得到比较好的散热效果，我们将晶体用铟铂包裹后固定在紫铜热沉上，通过水冷来控制晶体的温度，水温控制在 18°C 。

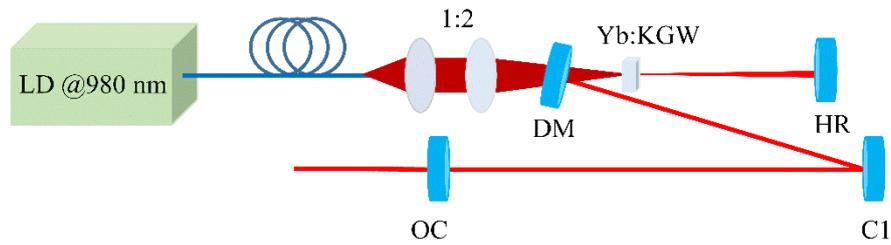


图 5.3 Yb:KGW 晶体连续光实验装置

Fig. 5.3 Experimental setup of CW Yb:KGW laser

首先在连续光输出条件下，测量了 Yb:KGW 连续光输出功率随泵浦光功率变化曲线，如图 5.4 所示，可以看出连续光功率随泵浦光功率增加而呈线性增长趋势，当泵浦光功率最大为 $28.4\ \text{W}$ 时，得到的连续光最高功率为 $8.2\ \text{W}$ ，转换效率为 28.8%。此时连续光的中心波长在 $1040\ \text{nm}$ 。随后我们测量了泵浦阈值，为 $6.8\ \text{W}$ 。通过分析可知，激光输出的中心波长光谱宽度与净增益截面有关，通过合理的设计谐振腔的结构，可以进一步提高输出功率。

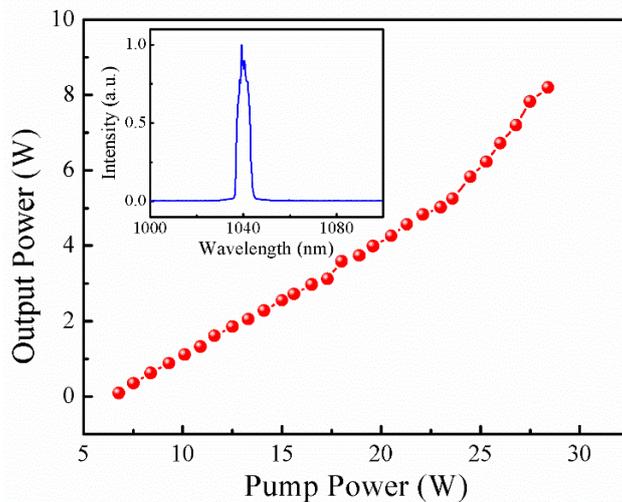


图 5.4 Yb:KGW 晶体连续光输出功率和光谱曲线

Fig. 5.4 The CW output power with pump power

在成功实现了 1.04 μm Yb:KGW 连续光运转的基础上, 随后进行了被动锁模 Yb:KGW 飞秒激光的实验研究。实验装置如图 5.5 所示, 谐振腔结构为简单的 Z 型腔, 其中 DM 为双色镜, 镀有 980 nm 高透, 1020-1100 nm 高反的介质膜, C1 和 C2 为凹面镜, 曲率半径分别为 $f=300\text{ mm}$ 和 $f=500\text{ mm}$, 镀有对 1020-1100 nm 的高反膜, HR1-HR4 为平面高反镜, 镀有对 1020-1100 nm 高反的介质膜, 同时为了补偿腔内晶体等引起的材料色散, 在腔内使用了 GTI 镜进行色散补偿, 使腔内总的净色散量保持在负值。C3 为凹面聚焦镜, 实验中分别采用焦距 $f=300\text{ mm}$ 、 500 mm 和 600 mm 的镜片进行实验, OC 为输出镜, 输出率为 10%。为了实现稳定的被动锁模, 在腔内使用了 Batop GmbH 公司的 SESAM 进行辅助锁模, SESAM 的调制深度为 0.7%, 弛豫时间为 1 ps, 同时为了使 SESAM 得到比较好的散热效果, 实现稳定的高功率飞秒激光输出, 对 SESAM 采用了循环水散热, 水温保持在 18°C 。激光器谐振腔腔长设置为 1.9 m, 对应的重复频率为 78 MHz。

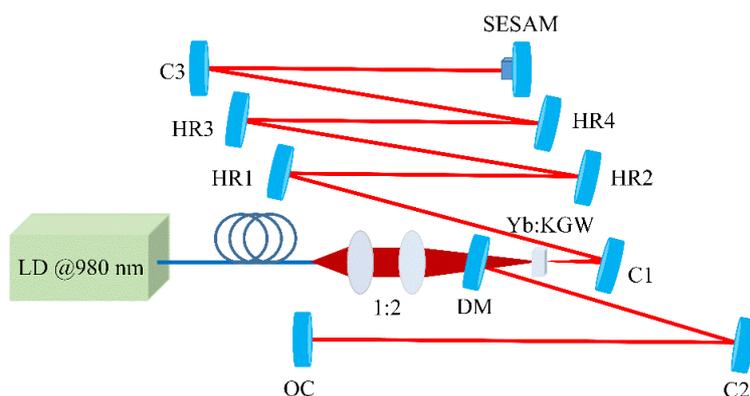


图 5.5 Yb:KGW 飞秒激光振荡器实验装置

Fig. 5.5 Experimental setup of femtosecond Yb:KGW laser



图 5.6 飞秒振荡器实际运行效果图

Fig. 5.6 Real picture of Yb:KGW

实验中为了防止在调节光路过程中对 SESAM 造成损伤，先采用高反镜代替 SESAM 进行实验。利用商用软件 Laser Matrix，模拟了谐振腔内激光的模式分布，如图 5.7 所示，图 (a)、(b) 和 (c) 分别对应凹面镜 C3 不同聚焦时的腔内模式分布，晶体束腰上的光斑直径分别为 $220\ \mu\text{m}$ 、 $180\ \mu\text{m}$ 和 $160\ \mu\text{m}$ ，同时 SESAM 上的光斑大小分别为 $140\ \mu\text{m}$ 、 $210\ \mu\text{m}$ 和 $240\ \mu\text{m}$ 。可以看出，当采用焦距 $f=500\ \text{mm}$ 的凹面镜时，晶体中的激光的束腰半径和泵浦光束腰半径可以实现比较好的模式匹配，同时 SESAM 上的聚焦光斑大小也比较适中，使其工作于 10-20 倍的饱和能流，在避免 SESAM 损坏的同时也有利于实现高功率的锁模激光输出。

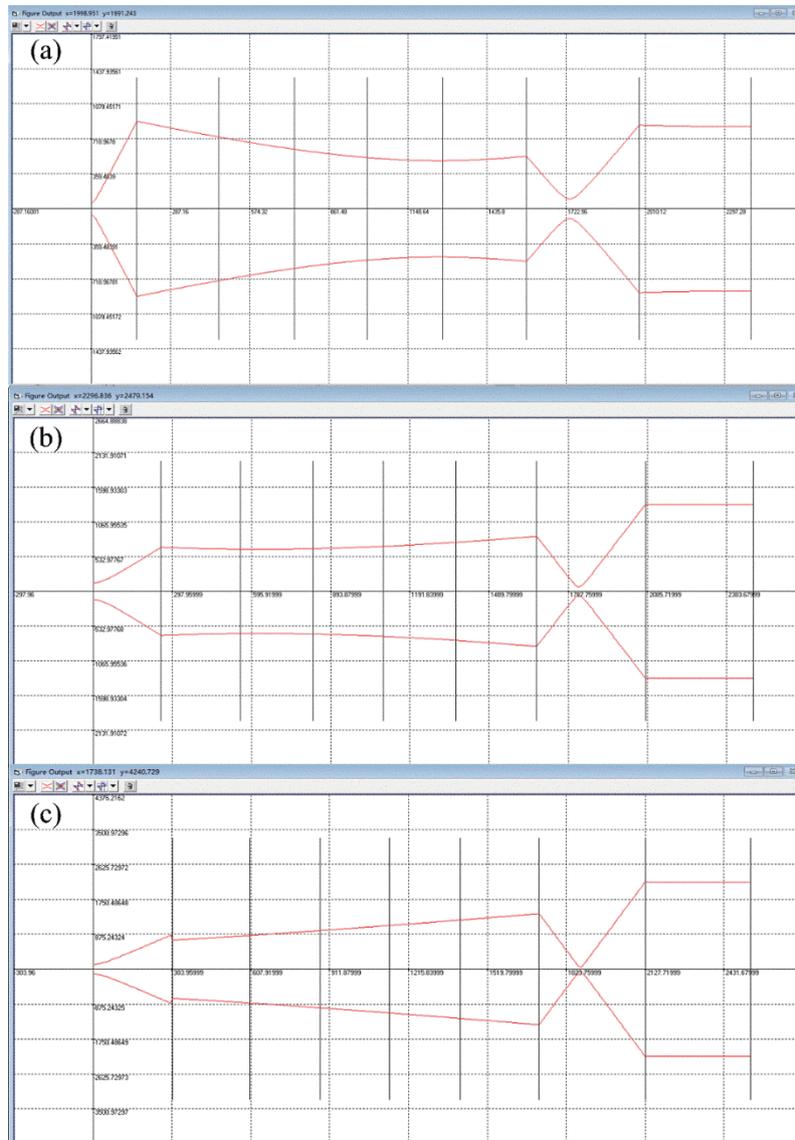


图 5.7 谐振腔内模式分布: (a) $f=300\ \text{mm}$; (b) $f=500\ \text{mm}$; (c) $f=600\ \text{mm}$

Fig. 5.7 Cavity distribution of Yb:KGW: (a) $f=300\ \text{mm}$; (b) $f=500\ \text{mm}$; (c) $f=600\ \text{mm}$

在对谐振腔结构理论模拟后，最终选择焦距 $f=500\text{ mm}$ 的凹面镜进行实验，当泵浦光功率为 28.4 W 时，此时获得连续光的最大功率为 9 W 。随后我们用 SESAM 替代了平面高反镜，经过优化后实现了锁模激光输出。在相同的泵浦光功率下，利用 10% 的 OC 获得的最大功率为 7.6 W ，转换效率为 26.8%，单脉冲能量为 97 nJ ，峰值功率高达 0.606 MW 。如图 5.8 所示，振荡器的锁模泵浦阈值为 11 W ，随着泵浦光功率的提升，Yb:KGW 锁模输出功率呈线性增加，但是当泵浦光功率超过 28.4 W 时，锁模激光变得不再稳定，在示波器上还能观察到多脉冲现象，这说明孤子产生了破裂，同时 SESAM 已经达到饱和，通过观察可以发现 SESAM 上已经出现了比较明显的绿点，继续增加泵浦功率容易对 SESAM 造成损伤。

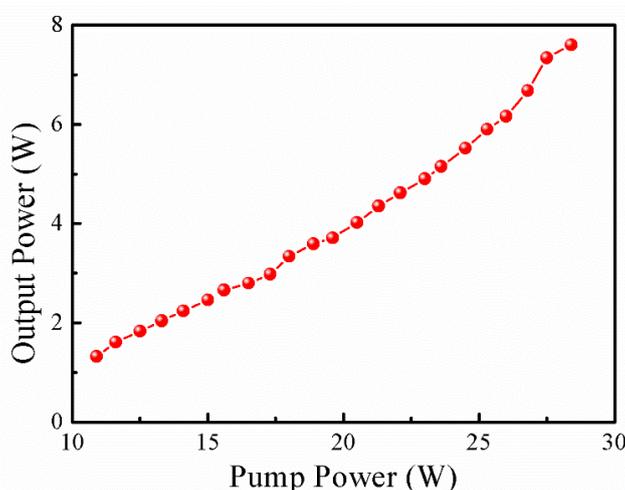
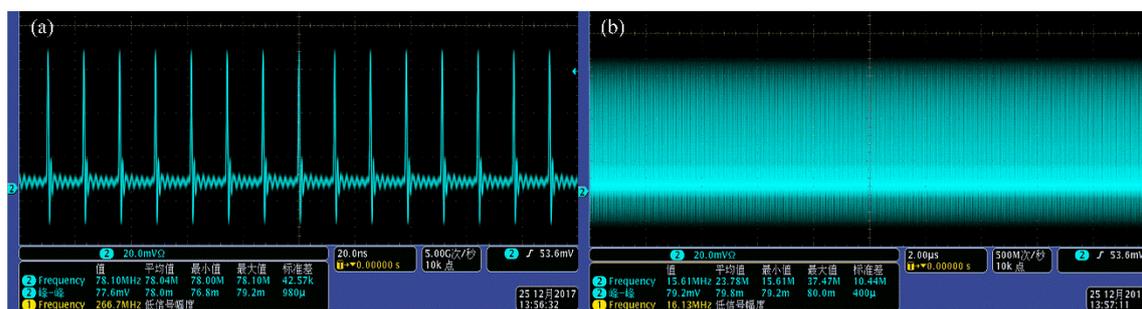


图 5.8 Yb:KGW 锁模输出功率随泵浦光变化曲线

Fig. 5.8 The output power of mode locked Yb:KGW with different pump energy

图 5.9 稳定锁模时脉冲序列：(a) 20 ns；(b) 2 μ sFig. 5.9 Mode-locked pulse trains: (a) 20 ns; (b) 2 μ s

利用示波器和光电二极管检测了锁模脉冲激光的脉冲序列，如图 5.9 所示，Yb:KGW 振荡器的重复频率为 78 MHz ，纵模脉冲序列比较稳定，没有多脉冲和脉冲分裂等现象，这表明激光器已经处于比较理想的锁模状态。为了得到接近傅

里叶变换极限的飞秒脉冲，我们在腔内使用 4 片 GTI 镜来补偿晶体和空气等引起的材料色散，每片 GTI 镜在 1020-1070 nm 范围内提供的单程色散量的平均值为 -1000 fs^2 ，使腔内总的净色散量维持在负值。利用强度自相关仪和光谱仪测量了锁模激光的脉冲宽度和光谱，如图 5.10 所示，其中黑色实线代表实测数据，红色实线是双曲正割拟合曲线，假设锁模脉冲属于双曲正割型，最终获得的脉冲宽度为 160 fs，对应的光谱中心波长为 1048 nm，半高宽约为 8 nm，此时计算得到的时间带宽积为 $\Delta\tau\Delta\nu=0.35$ ，说明锁模激光脉冲宽度已经接近傅里叶变换极限。

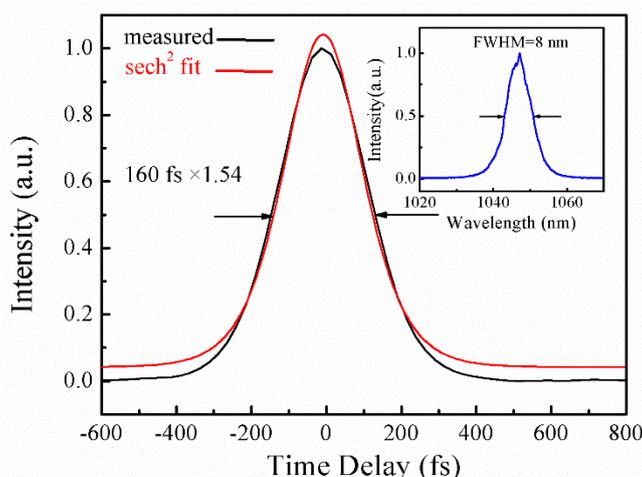


图 5.10 锁模脉冲自相关曲线和光谱曲线

Fig. 5.10 The pulse duration and spectrum at 1048 nm

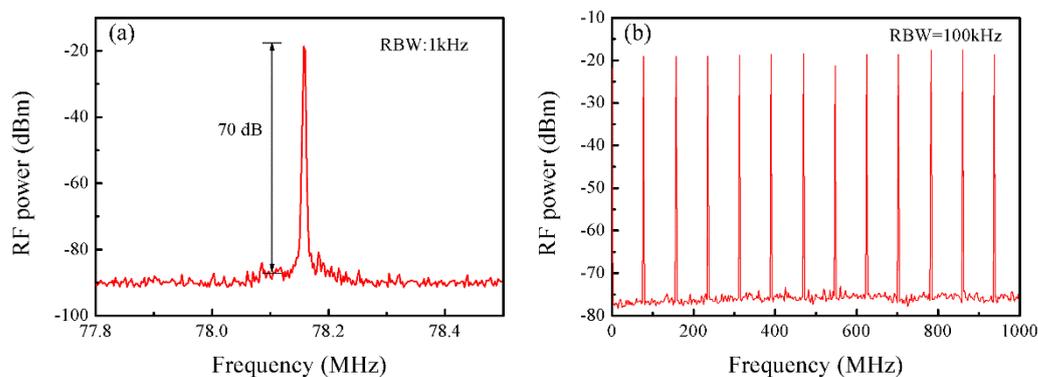


图 5.11 锁模脉冲在分辨率分别为 1 kHz 和 100 kHz 时的频谱曲线

Fig. 5.11 Typical radio frequency spectrum of the Yb:KGW laser.

(a) RF spectrum of the fundamental beat note with the RBW of 1 kHz; (b) wide spectrum of 1 GHz with the RBW of 100 kHz

同时利用商用频谱仪测量了锁模脉冲频谱序列，如图 5.11 所示，图 (a) 是分辨率为 1 kHz 时测量得到的基频信号，重复频率在 78 MHz，信噪比为 70 dB，基频信号两边并没有出现其他调制信号，表明振荡器处于比较稳定的锁模状态。

图 (b) 描述了分辨率在 100 kHz 条件下, 在 0-1 GHz 范围内的频谱序列, 可以看出整个频谱信号的峰值都比较稳定, 并且锁模脉冲具有比较高的信噪比, 反映出振荡器工作在稳定的锁模状态, 没有出现调 Q 包络。最后测量了 Yb:KGW 锁模功率稳定性和光束质量 M^2 因子, 如图 5.12 所示, 当锁模功率为 7.6 W 时, 其光束质量 M^2 因子在水平方向和竖直方向分别为 1.118 和 1.123, 光斑整体较圆。同时记录了 2 小时内的锁模功率稳定性, 功率抖动 RMS 值为 0.86%。

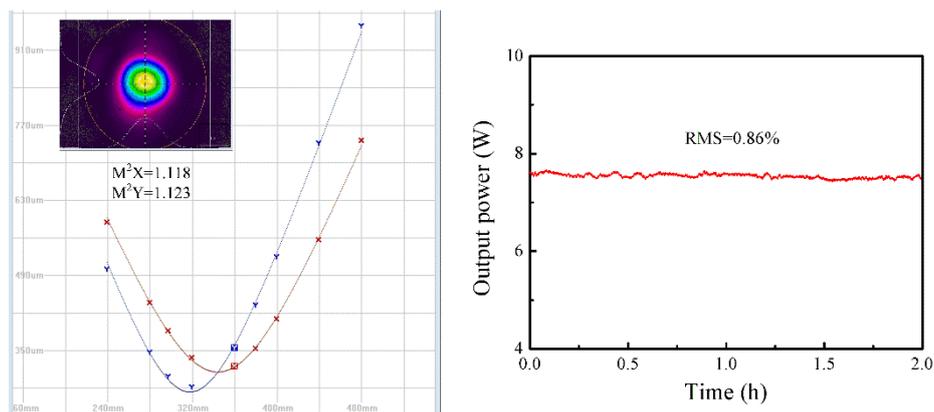


图 5.12 锁模脉冲光束质量 M^2 因子和功率稳定性

Fig. 5.12 Beam quality and power stability of mode-locked pulse

实验中发现, 在其他条件不变的情况下, 可以通过微调 SESAM 的位置将锁模激光的中心波长由 1048 nm 变为 1030 nm, 在 28.4 W 的泵浦光功率下, 获得的最高平均功率为 6.5 W, 转换效率为 22.9%, 对应的单脉冲能量为 83 nJ, 峰值功率为 0.456 MW。同样利用自相关仪和光谱仪测量了此时锁模激光脉冲宽度和光谱, 如图 5.13 所示, 假设锁模脉冲属于双曲正割型, 测量得到的脉冲宽度为 182 fs, 对应的光谱半高宽为 8 nm, 计算得到时间带宽积 $\Delta\tau\Delta\nu=0.411$, 说明锁模脉冲还存在一定量的啁啾, 在中心波长 1030 nm 处腔内的色散并没有得到完全补偿, 这是因为实验中采用色散补偿器件是 GTI 镜, 在第二章中曾经提到, GTI 镜片虽然可以提供比较高的负色散量, 但是难以在宽带范围内获得均匀的色散特性, 导致不同中心波长所对应的负色散量差异相对较大。

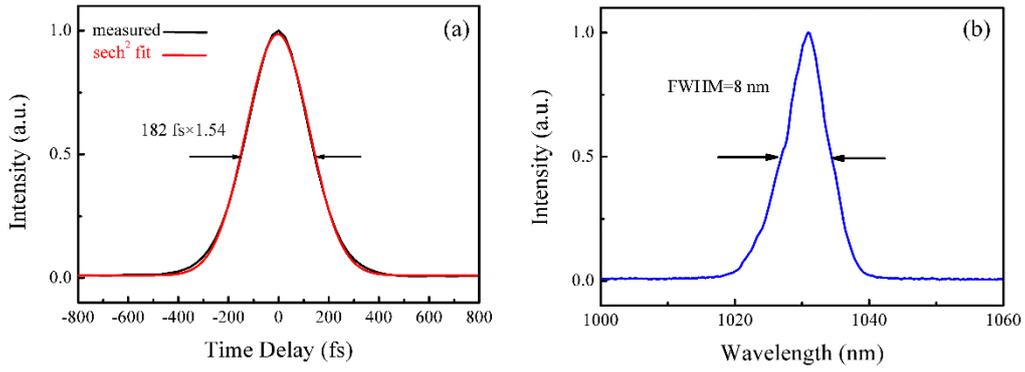


图 5.13 锁模脉冲自相关曲线和光谱曲线

Fig. 5.13 The pulse duration and spectrum at 1030 nm

用 M^2 仪测量了锁模激光中心波长在 1030 nm 时的光束质量，在水平方向和垂直方向上的 M^2 值分别为 1.151 和 1.238，光斑整体比较圆。

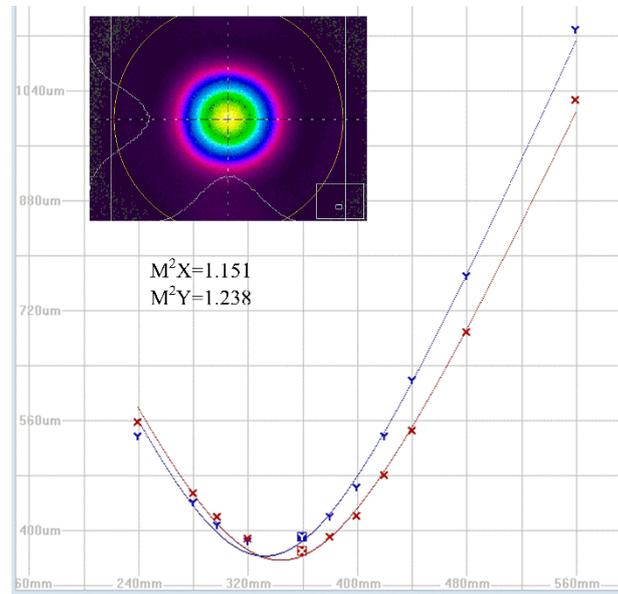


图 5.14 锁模激光中心波长 1030 nm 光束质量 M^2 因子

Fig. 5.14 Beam quality of mode locked pulse at 1030 nm

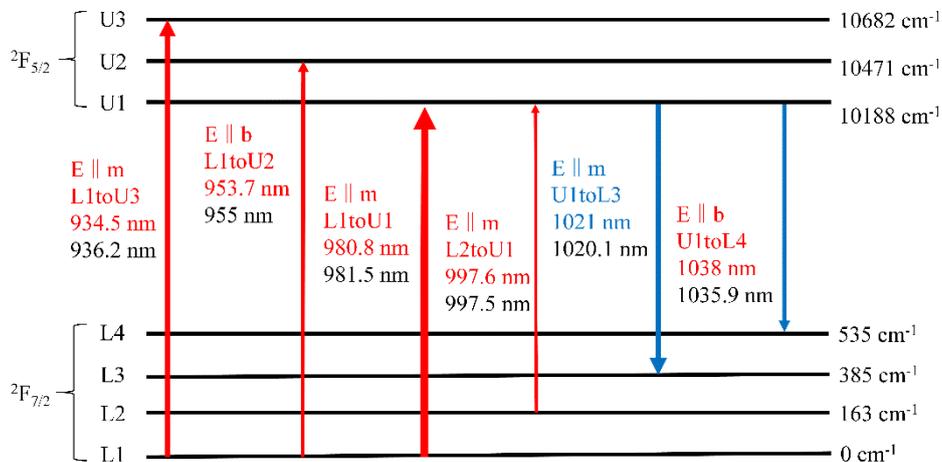


图 5.15 Yb:KGW 晶体中 Yb³⁺的几个主要吸收和辐射能级跃迁示意图

 Fig. 5.15 The absorption and emission energy level of Yb³⁺ in Yb:KGW crystal

Yb:KGW 晶体的能级结构如图 5.15 所示，属于准三能级结构，由于基底具有比较强的晶格场，因此激发态 ${}^2F_{5/2}$ 和基态 ${}^2F_{7/2}$ 均产生了比较大的能级分裂，这样有利于提高反转粒子数，降低激光泵浦阈值，同时较大的能级宽度可以获得比较宽的激光发射谱，有利于超短脉冲激光的产生。利用准三能级结构，我们模拟了 Yb:KGW 晶体的激光特性，根据反转粒子数速率方程[148-150]：

$$\frac{d\Delta N(r,z)}{dt} = fRr_p(r,z) - \frac{\Delta N(r,z) - \Delta N^0}{\tau} - \frac{fc\sigma\Delta N(r,z)}{n}\Phi\phi_0(r,z) = 0 \quad (5-1)$$

其中 $\Delta N(r,z) = N_b(r,z) - N_a(r,z)$ ，表示激光上能级和下能级的粒子数之差，在热平衡条件下， $N_2^0 \ll N_1^0$ ，所以 $\Delta N^0 \approx -N_1^0$ 。 $f = f_a + f_b$ ， f_a 和 f_b 分别表示激光上下能级的粒子数分别占 ${}^2F_{7/2}$ 激发态和 ${}^2F_{5/2}$ 基态上的总粒子数比例， τ 表示激光上能级荧光寿命， σ 为受激发射截面， R 代表泵浦速率，其表达式为：

$$R = P_p \eta_a \eta_q / (h\nu_p) \quad (5-2)$$

其中 P_p 表示泵浦光功率， η_a 表示泵浦光的吸收效率， $\eta_a = 1 - \exp(-\alpha l)$ ， α 为吸收系数， l 为晶体长度， η_q 表示被吸收的光子数转换为上能级粒子数的效率， ν_p 为泵浦光频率， $r_p(r,z)$ 和 $\phi_0(r,z)$ 分别表示泵浦光和腔内激光的高斯分布函数， $\Phi = 2nlP_1/(ch\nu_1)$ ，表示腔内光子数目，其速率方程为：

$$\frac{d\Phi}{dt} = \frac{c\sigma}{n} \iiint \Delta N(r,z)\Phi\phi_0(r,z)dV - \frac{\Phi}{\tau_c} = 0 \quad (5-3)$$

其中 $\tau_c = 2nl/(c\delta)$ ，物理含义是腔内激光光子寿命， $\delta = 2L + T$ 为光子在腔内往返一周所经历的损耗， L 和 T 分别表示谐振腔的单程衍射损耗和输出镜的透过率，定义参数

$$F = \frac{4f_b\sigma\tau\eta_g}{h\nu_p\pi\omega_l^2\delta} P_p \eta_a \quad (5-4)$$

$$S = \frac{4f_b\sigma\tau}{h\nu_l\pi\omega_l^2} P_l \quad (5-5)$$

联立公式 (5-1) 和 (5-3)，对 z 积分可得

$$F = \frac{1 + \frac{B}{fS} \ln(1 + fS)}{f \int_0^\infty \frac{\exp[-(a^2 + 1)x]}{[1 + fS \exp(-a^2 x)]} dx} \quad (5-6)$$

式中 $a = \omega_p / \omega_l$ ，代表泵浦光束腰和激光束腰的比值， $B = 2N_1^0 \sigma l / \varepsilon$ ，表示重吸收损耗和整个腔损耗的比值， $x = 2r^2 / \omega_p^2$ ， F 是归一化泵浦光功率， S 是归一化的腔内激光功率，根据公式 (5-6) 可以计算准三能级系统的阈值和斜效率。在满足条件 $\Phi = 0$ ， $S = 0$ 时，由上式可以得到准三能级的激光阈值条件：

$$F_{th} = (1 + a^2)(1 + B) / f \quad (5-7)$$

$$P_{p,th} = \frac{\pi h \nu_p (\omega_l^2 + \omega_p^2) (\delta + T + 2N_1^0 \sigma l)}{4\sigma \tau f \eta_q \eta_a} \quad (5-8)$$

从 (5-8) 式中可以看出， η_a 和 $2N_1^0 \sigma l$ 两项均与激光增益介质长度 l 有关，随着 l 的增加，这两项同时变大。对于给定掺杂浓度的 Yb:KGW 晶体，在谐振腔损耗 ε 为定值的条件下，会有一个最佳晶体长度 l_{opt} ，当晶体实际长度 $l < l_{opt}$ 时，晶体对泵浦光的吸收比较低，当 $l > l_{opt}$ 时，部分增益介质由于下能级存在热粒子而未实现粒子数反转。以上两点均会造成泵浦光阈值的增加，通过对公式 (5-8) 求导，可以计算得到晶体的最佳长度满足以下公式：

$$\alpha \exp(-\alpha l_{opt}) \left(\frac{2N_1^0 \sigma}{\alpha} + \delta + T + 2N_1^0 \sigma l_{opt} \right) - 2N_1^0 \sigma = 0 \quad (5-9)$$

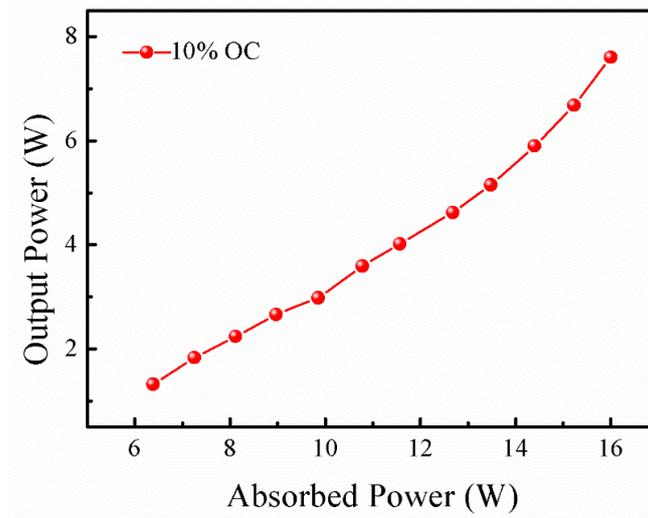


图 5.16 Yb:KGW 锁模功率随吸收功率变化曲线

Fig.5.16 The variation of output power as function of absorbed power

对于 5 at% Yb:KGW 晶体, 当泵浦光功率为 28.4 W 时, 计算得到的最佳晶体长度 l_{opt} 为 3.8 mm, 而在实验中采用的晶体长度为 5 mm, 这时由于部分晶体并没有提供粒子数反转, 反而造成了吸收损耗, 最终导致泵浦阈值提升。随后测量了 Yb:KGW 晶体在未出光时的实际吸收功率, 如图 5.16 所示, 当获得最高锁模功率 7.6 W 时, 吸收功率约为 16 W, 对应的光光转换效率为 47.5%。

5.3 高功率 Yb:CGA 被动锁模皮秒激光实验研究

在上一节的基础上, 用 Yb:CGA 替换 Yb:KGW 晶体进行实验, 实验装置如图 5.17 所示, 其中泵浦源为中心波长 980 nm 的光纤耦合式 LD 激光器, 光纤芯径为 100 μm , 采用 1:1 的耦合聚焦透镜将泵浦光聚焦到 Yb:CGA 晶体上, 聚焦光斑约为 100 μm 。DM 为双色镜, 镀有对 980 nm 高透, 1020-1100 nm 高反的介质膜, 激光器谐振腔为简单的线形腔, C1 和 C2 为凹面镜, 曲率半径分别为 300 mm 和 500 mm, 镀有对 1020-1100 nm 的高反介质膜, HR1 和 HR2 为 GTI 镜, 在 1020-1100 nm 范围内具有较高的反射率, 同时在 1020-1100 nm 提供的单程色散量为 -1000 fs², C3 为凹面镜, 焦距为 $f=300$ mm, 同样镀有 1020-1100 nm 的高反介质膜, OC 为输出镜, 输出率为 10%。SESAM 的中心波长为 1064 nm, 调制深度为 0.7%, 弛豫时间为 500 fs。Yb:CGA 按照晶体切割方向分为两种, 即 a-cut 和 c-cut, 晶体尺寸为 $4\times 4\times 4$ cm³, 分别采用两种切割类型的晶体进行实验。利用 Laser Matrix 软件模拟了谐振腔内的激光模式分布, 如图 5.18 所示, 通过计算可得到此时晶体上激光束腰直径为 110 μm , 略大于泵浦光斑, 由此可以看出晶体上的束腰和泵浦光束腰匹配度比较高。

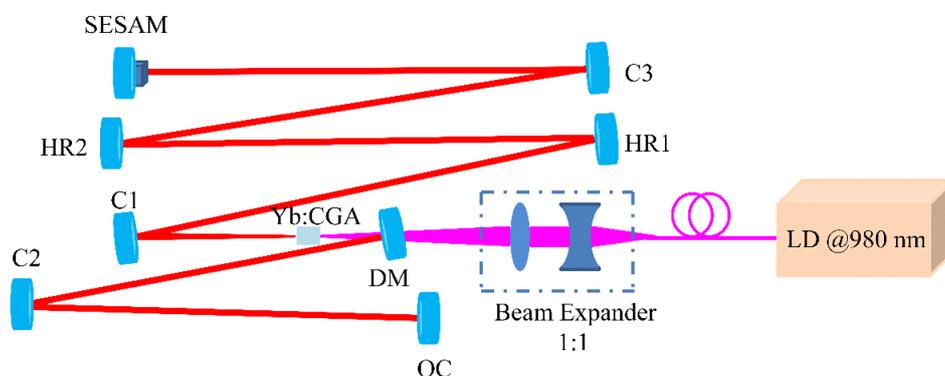


图 5.17 Yb:CGA 飞秒激光振荡器实验装置

Fig. 5.17 Experimental setup of Yb:CGA laser system

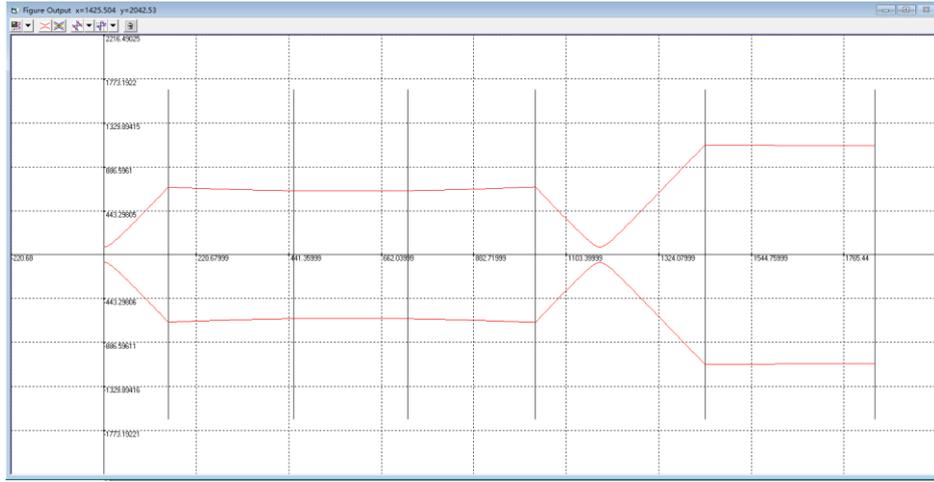


图 5.18 Yb:CGA 飞秒激光振荡器腔内模式分布

Fig. 5.18 Cavity distribution of Yb:CGA

首先测量了连续光运转条件下的激光输出功率。图 5.19 描述了连续光功率随泵浦光功率的变化曲线，从图中可以看出，在相同的泵浦光功率条件下，a-cut 的 Yb:CGA 连续光功率要比 c-cut 的高，同时测量了连续光光谱，c-cut 的光谱要比 a-cut 的略宽一些。之后用 PBS 检验了输出激光的偏振特性，其中 a-cut 晶体的偏振度较好，当 9.8 W 的直流功率经过 PBS 后，剩余的水平偏正光功率为 9.48 W，而对于 c-cut 晶体，6.57 W 的直流通过后只有 2.42 W，偏振度不高，大部分激光偏振状态为竖直偏振，因此最后选用 a-cut 的 Yb:CGA 晶体进行实验。

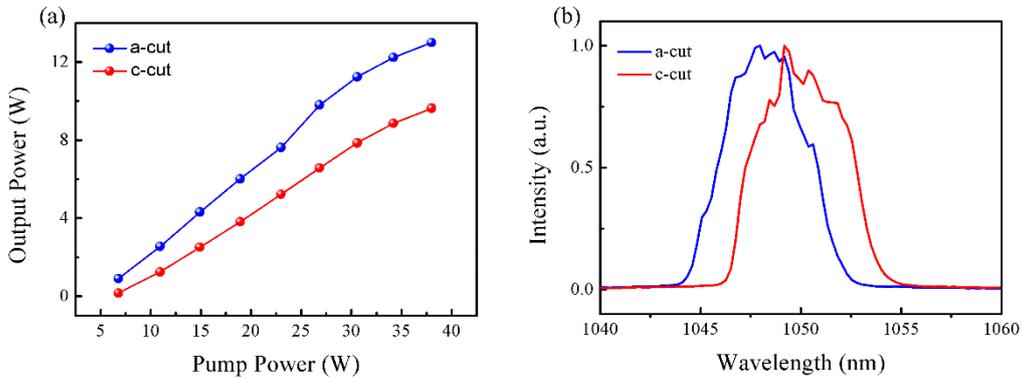


图 5.19 Yb:CGA 连续光功率随泵浦功率变化曲线和输出光谱

Fig. 5.19 The CW output power and spectrum of Yb:CGA

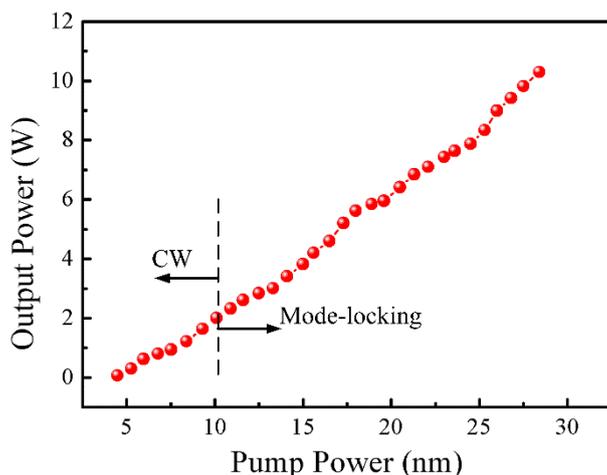
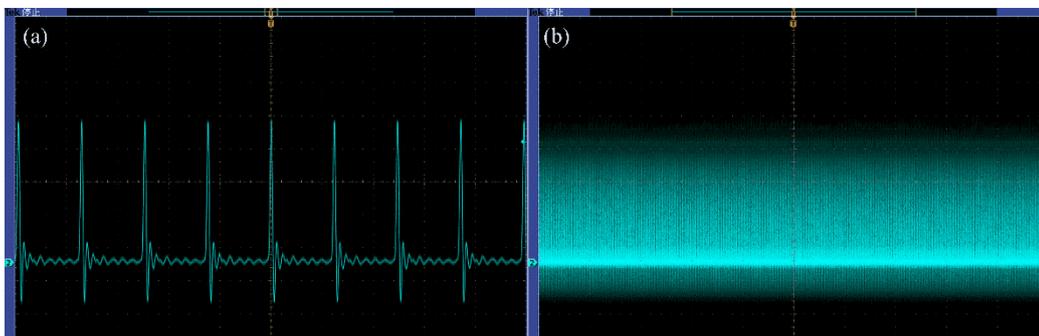


图 5.20 Yb:CGA 锁模功率随泵浦功率变化曲线

Fig. 5.20 Output power of the mode-locked Yb:CGA

图 5.21 稳定锁模时脉冲序列：(a) 10 ns/div; (b) 2 μ s/divFig. 5.21 Mode-locked pulse trains: (a) 10 ns/div; (b) 2 μ s/div

在实现了连续光最高功率输出之后，通过调节 SESAM 的前后位置和角度，可以实现锁模激光输出。如图 5.20 所示，当泵浦光功率超过 10.9 W 时，可以建立比较稳定的锁模状态，当泵浦光功率为 28.4 W 时，获得的最高平均功率为 10.3 W，转换效率接近 36.3%，对应的单脉冲能量为 127 nJ。随后用示波器和光电二极管记录了锁模脉冲序列，图 5.21 分别描述了分辨率为 10 ns/div 和 2 μ s/div 时的锁模脉冲序列图，从图中可以看出锁模序列比较稳定，没有出现多脉冲和脉冲分裂等现象。随后用强度自相关仪和光谱仪测量了此时锁模激光脉冲宽度和光谱，如图 5.22 (b) 所示，从光谱曲线中可以看出，光谱并不是高斯型，而是呈马鞍型，这说明锁模状态属于典型的耗散孤子锁模。之前在第二章曾经提到，孤子锁模是依靠激光器谐振腔内负的群速度色散和自相位调制之间达到平衡从而产生孤子脉冲。而耗散孤子锁模是激光器谐振腔内增益、损耗、正色散以及非线性效应的共同作用结果。当泵浦光功率发生改变时，激光器谐振腔内的增益和损耗以

及非线性效应相互作用，最终实现耗散孤子锁模。传统的孤子锁模，激光器谐振腔内的净色散值为负，锁模脉冲类型属于双曲正割型，其光谱呈高斯型分布，而对于耗散孤子锁模，激光器谐振腔内的净色散值为正，激光光谱呈马鞍型分布。图 5.22 (a) 描述了锁模脉冲强度自相关曲线，假设脉冲属于双曲正割类型，最终获得的脉冲宽度为 8.1 ps，此时光谱半高宽为 7 nm。最后用光束质量分析仪测量了最大功率时的 M^2 因子，如图 5.23 (a) 所示，其水平方向和垂直方向的 M^2 因子分别为 1.181 和 1.120，并且光斑整体比较圆。最后测量了锁模功率稳定性，在最高锁模功率 10.3 W 的条件下，其功率抖动 RMS 值为 0.33%。后续我们准备将振荡器进行密封，隔绝外界空气的扰动，使锁模状态和输出功率变得更加稳定，以便于后续的使用。

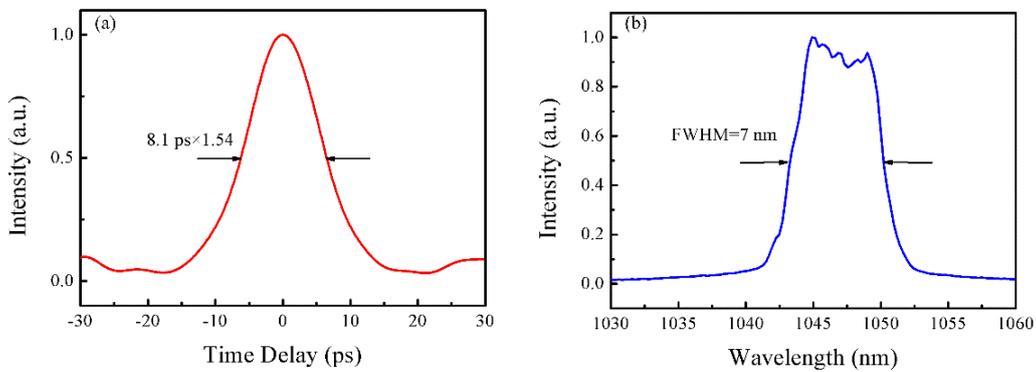


图 5.22 Yb:CGA 锁模脉冲自相关曲线和光谱曲线

Fig. 5.22 The pulse duration and spectra of mode locked Yb: CGA

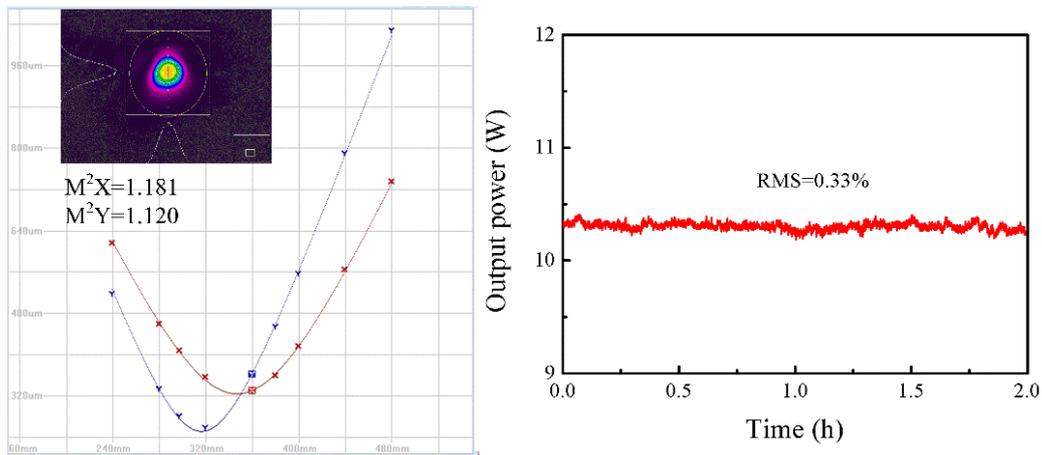


图 5.23 锁模脉冲光束质量 M^2 因子和功率稳定性

Fig. 5.23 Beam quality and power stability of mode locked pulse

5.4 本章小结

本章首先介绍了 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体的光学特性, 其次重点研究了半导体激光器泵浦的 Yb:KGW 和 Yb:CGA 振荡器被动锁模实验装置和实验结果。基于 Yb:KGW 晶体, 在 28.4 W 的泵浦光功率条件下, 获得的锁模激光最高平均功率为 7.6 W, 转换效率为 26.8%, 单脉冲能量为 97 nJ, 峰值功率高达 0.606 MW, 此时对应的激光脉冲宽度为 160 fs, 中心波长在 1048 nm, 重复频率 78 MHz。同时也在中心波长 1030 nm 处实现了锁模, 最高平均功率为 6.5 W, 转换效率为 22.9%, 对应的单脉冲能量为 83 nJ, 峰值功率为 0.456 MW。在高功率运转条件下, 光束质量 M^2 因子均小于 1.2, 功率抖动 RMS 值小于 1%。最后介绍了高功率被动锁模 Yb:CGA 皮秒振荡器, 在实验中我们实现了耗散孤子锁模, 获得了平均功率 10.3 W, 单脉冲能量 127 nJ, 脉冲宽度 8.1 ps 的高功率锁模激光输出。随着半导体激光器技术的迅速发展和日益成熟, 这种小型化、全固化、高功率的飞秒、皮秒振荡器在泵浦光参量振荡器、非线性光谱学和材料加工等领域有着广泛的应用前景。

第 6 章 宽带可调谐飞秒 OPO 用于神经显微成像的研究

高功率、宽带可调谐的多波长飞秒激光光源由于在时间分辨光谱学、生物成像、激光雷达、大气环境监测等领域的广泛应用，一直是超快激光技术研究倍受关注的内容之一。与传统的飞秒激光器相比，受限于激光增益介质，通常只能输出特定的波长，而飞秒 OPO 可以利用相位匹配技术，获得宽带可调谐的超短脉冲激光，这使得其在一些研究领域发挥着无与伦比的作用。近年来，随着光学生物成像技术的发展，双光子显微成像技术备受人们关注。双光子显微成像是将双光子激发荧光与激光扫描共聚焦显微镜相结合的一种新技术，其优势在于成像深度较大，穿透性强，对生物活体组织的损伤较小，空间分辨率和对比度高，同时荧光收集率高。可调谐的飞秒激光器作为双光子显微成像系统的重要组成部分，其激光性能直接影响到后续的生物显微成像效果。大尺度的三维超高分辨率成像技术可以在获取大尺度脑联结信息的同时解析突触的精细结构，而具有穿透深度大、背景激发低、光毒性小等优势的高功率宽带可调谐飞秒激光光源是这一影像技术成功开发的关键之一。同样由于这些特点，高功率宽带可调谐飞秒激光系统在超快光谱学、激光精密加工制作和生物、医学领域、双光子显微成像等方面有着不断增长的应用需求，是具有重要学术意义及广泛市场前景的研究对象，已成为基础科学、精密制造及生物医疗等行业取得学术创新及新经济增长点的重要工具及实用平台。本章我们主要介绍基于自主开发和研制的宽带可调谐飞秒 OPO 激光器，结合显微成像系统，开展的一系列用于神经显微成像的研究。

6.1 宽带可调谐飞秒 OPO 样机设计与搭建

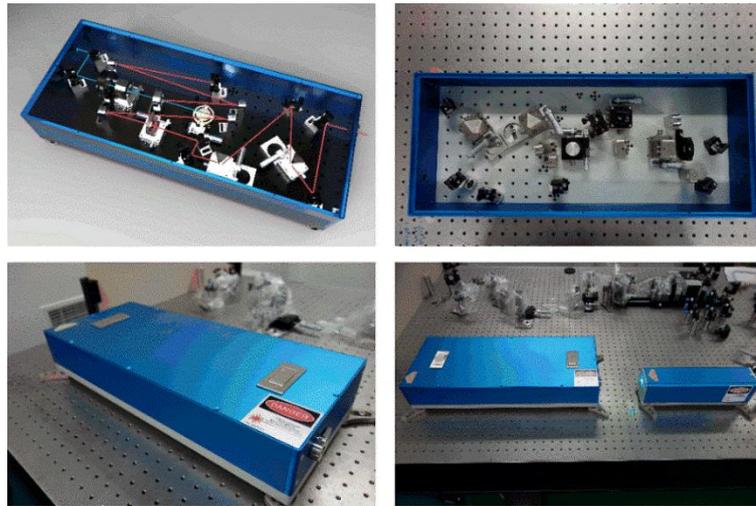


图 6.1 多波长宽带可调谐飞秒 OPO 工程化设计和产品样机

Fig. 6.1 The engineering design of the mutil wavelength widely tunable femtosecond OPO

在第三章中我们详细介绍了 515 nm 飞秒绿光泵浦 BIBO-OPO 实验，分别在重复频率 75.5 MHz, 151 MHz 和 755 MHz 条件下，实现了可见光-近红外的高功率、宽带可调谐飞秒激光输出。针对该激光系统，我们进行了工程化设计，如图 6.1 所示，首先激光器部分元器件采用不可调镜架，尽量减少光路中可以调节的部分，最大程度上减少镜架的微小形变引起的不稳定性；其次将倍频模块和 OPO 模块分开，合理设计 OPO 的腔型使激光器结构变得更加紧凑，以便缩小体积；再次激光器的外壳和底板所使用的金属材料需要经过热处理，避免由于温度的变化所引起的机械形变。

6.2 双光子显微成像实验

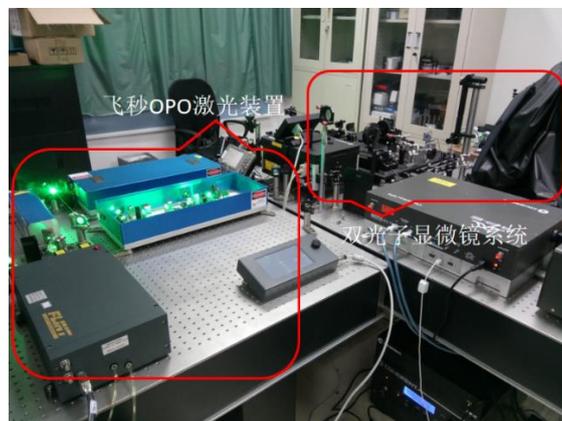


图 6.2 多波长可调谐激光器在中科院苏州医工所做实验的现场实物照片

Fig. 6.2 The real picture of mutil wavelength OPO in SIBET, CAS

采用我们自主研制的宽带可调谐飞秒 OPO 激光器作为驱动源，与中国科学院苏州医工所合作成功开展了双光子显微成像实验研究，获得了较好的实验结果。图 6.2 是我们的多波长可调谐激光器在中科院苏州医工所做实验的现场实物照片。

6.2.1 生物切片成像

分别利用 750 nm (a)，800 nm (b)，835 nm (c)和 923 nm (d) 的飞秒激光脉冲照射小牛肺动脉上皮细胞（Alexa 488 染细胞骨架，DAPI 染细胞核），结果如图 6.3 所示，不同波长得到的结果差别不是很大，从直观上看，700-800 nm 激发效率要高于 800-900 nm，并且短波长主要激发 Alexa 488 染料，长波长主要激发 DAPI 染料，这也符合双光子激发的规律。

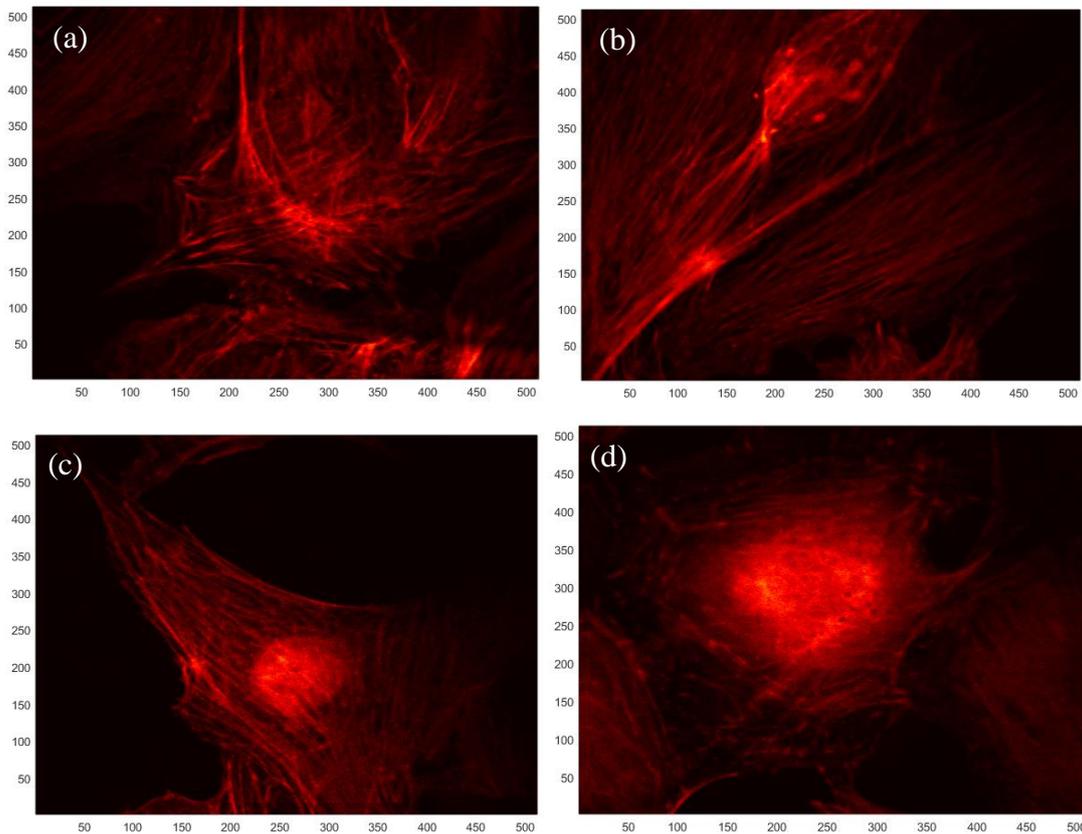


图 6.3 小牛肺动脉切片双光子成像: (a) 700 nm @10 mW; (b) 800 nm @15 mW;
(c) 835 nm @15 mW; (d) 923 nm @20 mW

Fig. 6.3 The two-photon imaging of calf pulmonary artery: (a) 700 nm @10 mW;
(b) 800 nm @15 mW; (c) 835 nm @15 mW; (d) 923 nm @20 mW

同时我们还用自行搭建的飞秒振荡器和商用激光器 (Chameleon Compact OPO, Coherent) 对小牛肺动脉切片双光子成像进行了对比，

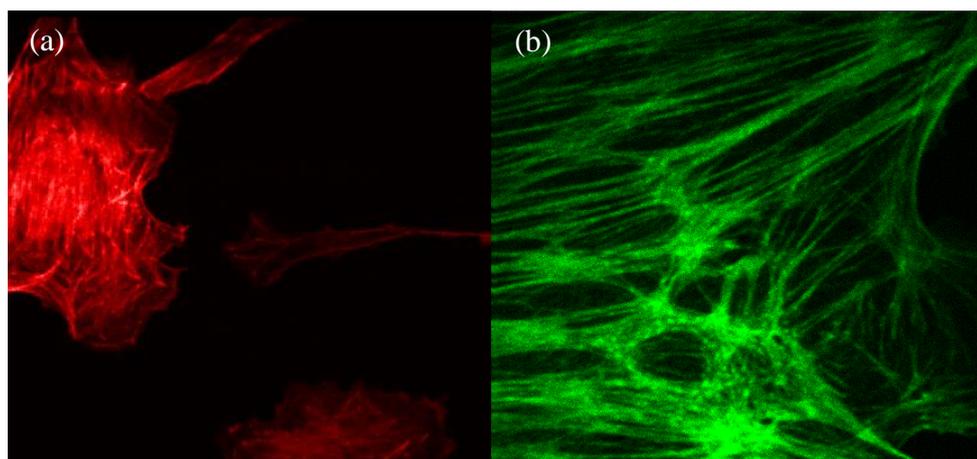


图 6.4 小牛肺动脉切片双光子成像: (a)自行搭建的激光器; (b)商用激光器

Fig. 6.4 The two-photon imaging of calf pulmonary artery: (a) home-made OPO;
(b) commercial laser system

图 6.4(a)是自行搭建的飞秒激光器的成像结果,激光器输出波长为 800 nm,功率为 15 mW,脉冲宽度为 90 fs。图 6.4 (b)是采用商业激光器的成像结果,激光参数为 20 mW @800 nm,脉宽 140 fs。商业激光器的结果中可以发现,激光脉冲只是激发了细胞骨架,相比于自行搭建的激光器实验结果(激发多个染料),可能和系统两个方面相关:滤光片选取不同;实验中飞秒激光脉冲的光谱宽度比较宽时,激光脉冲可以激发多个染料。

6.2.2 检流计振镜成像

利用 800 nm 和 835 nm 飞秒激光脉冲,结合 NA1.2 水浸生物物镜 (Nikon) 对黄色荧光小球展开了双光子成像分辨率标定实验。下面是全视场下荧光小球成像图:

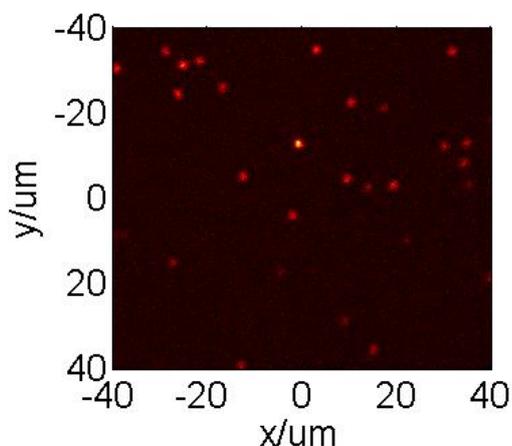


图 6.5 800 nm 双光子激发全视场小球成像

Fig. 6.5 Two-photon imaging of globule at 800 nm

此时设置视场大小为 $80\ \mu\text{m}$ ，激发光平均功率为 $15\ \text{mW}$ （物镜入瞳），得益于双光子成像的非线性激发效应，光斑的非对称并不影响双光子扫描点对称性，而且在全视场条件下，光斑强度比较均匀，自主研发的飞秒激光满足双光子成像的基本要求，缩小成像视场，采集图像如图 6.6 所示：

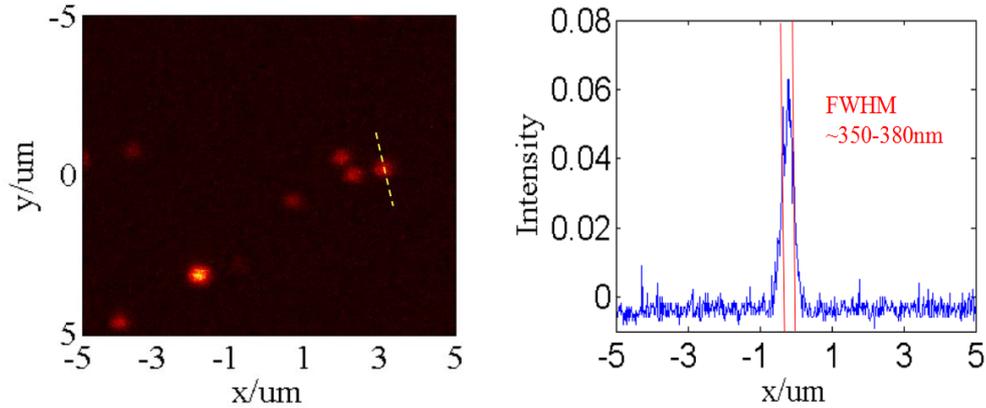


图 6.6 800 nm 双光子激发小球成像和一维分布

Fig. 6.6 Two-photon imaging of globule and one-dimensional distribution at 800 nm

从艾里斑分布一维曲线可知，系统成像分辨率约为 $350\text{-}380\ \text{nm}$ ，接近到双光子显微 $300\ \text{nm}$ 时的分辨极限 ($\text{Reso}=0.61*\lambda/\text{NA}/1.4\approx 300\ \text{nm}$)。同样改变激光输出波长，当中心波长为 $835\ \text{nm}$ 时，重复上述实验，未发现明显变化，飞秒激光在宽谱范围内都可以激发双光子效应，采集图片如图 6.7 所示：

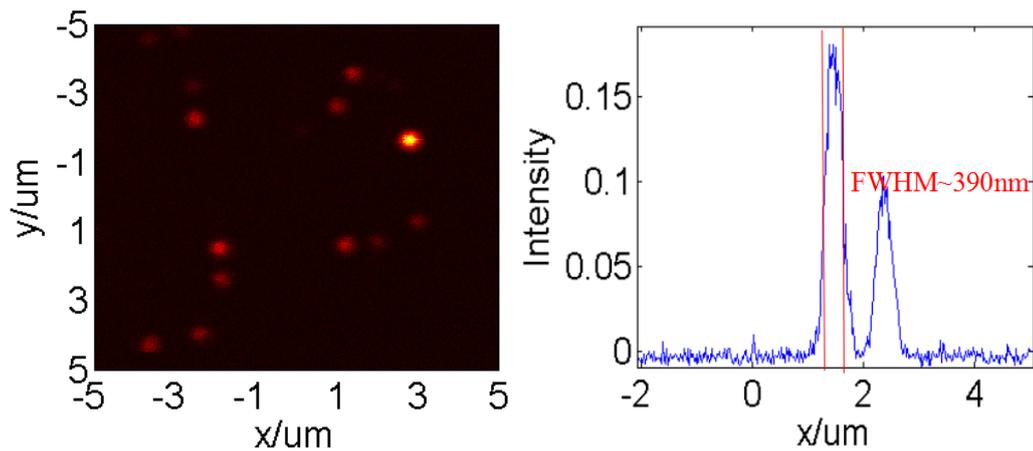


图 6.7 835 nm 双光子激发小球成像和一维分布

Fig. 6.7 Two-photon imaging of globule and one-dimensional distribution at 835 nm

此时，聚焦艾里斑大小依然约为 $390\ \text{nm}$ ，能够实现双光子成像。进一步调节中心波长到 $932\ \text{nm}$ ，得到的激光光斑略差，导致双光子聚焦光斑对称性降低：

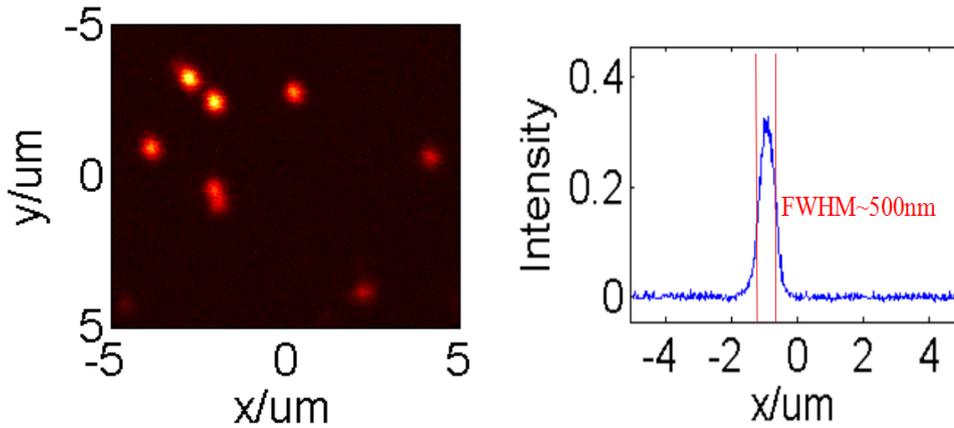


图 6.8 20 mW @932 nm 入射光能量下，黄色荧光小球图像和一维分布

Fig. 6.8 Two-photon imaging of globule and one-dimensional distribution at 932 nm

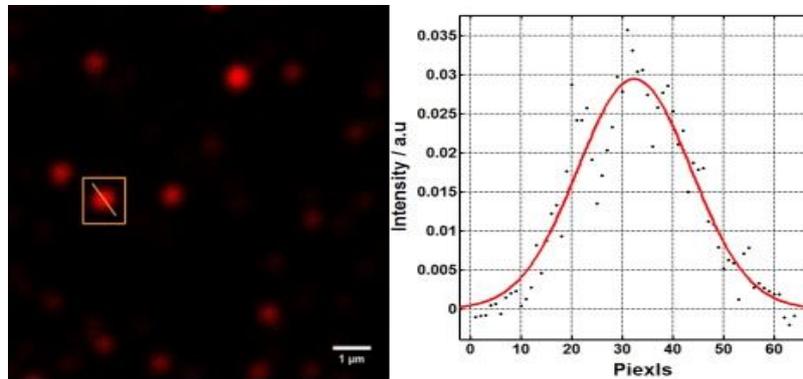


图 6.9 商用激光器对荧光小球成像图和强度曲线拟合

Fig. 6.9 Two-photon imaging of globule by using commercial laser system and intensity curve
 此时，激发光依然能激发双光子非线性效应，但是分辨率一方面受到光斑质量影响，另一方面波长变长后分辨率降低为 500 nm。利用商用的激光器进行了对比实验，结果如图 6.9 所示，商用相干激光器光斑质量略好于自主搭建的激光器，系统聚焦艾里斑对称性好些，分辨率约为 380 nm。

6.2.3 共振振镜扫描成像

对于活体成像双光子实验，一般采用共振振镜扫描，此时激发时间很短，荧光信号积分时间也比较短，系统对入射光在能量和脉宽上的要求更高。系统利用 16X 物镜（NIKON 0.8NA）对小牛肺动脉切片成像，并自编正弦校正畸变成像处理图像后，结果如图 6.10 和 6.11 所示：

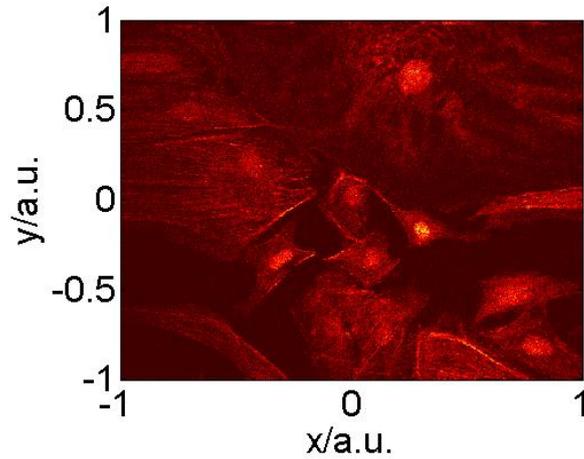


图 6.10 快扫双光子对小牛肺动脉成像 (原始图像), 激光参数为 100 mW @805 nm

Fig. 6.10 Fast two-photon imaging of calf pulmonary artery (initial image) at 805 nm

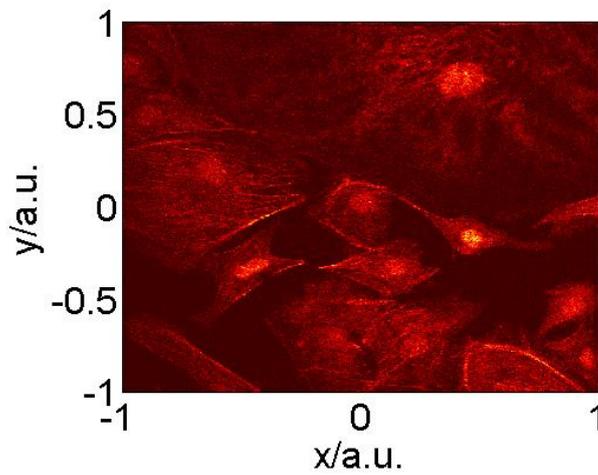


图 6.11 快扫双光子对小牛肺动脉成像(畸变校正图像), 激光参数为 100 mW @805 nm

Fig. 6.11 Fast two-photon imaging of calf pulmonary artery (revised image) at 805 nm

当双光子显微镜应用于活体成像时, 需要考虑到样品的厚度, 对于较厚的样品小鼠肾脏细胞成像如图 6.12 所示:

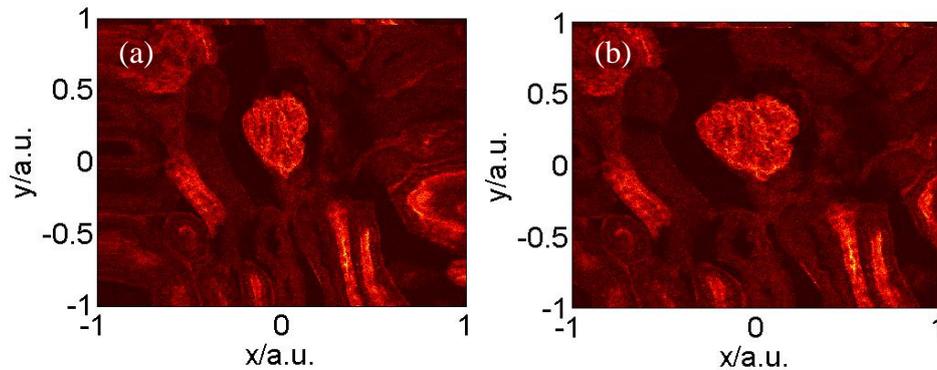


图 6.12 快扫双光子对小鼠肾脏细胞成像: (a) 原始图像; (b) 畸变校正图像

激光参数为 25 mW @805 nm

Fig. 6.12 Fast two-photon imaging of mice renal cells at 805 nm: (a) initial image;
(b) revised image

对于更厚的样品，比如活体斑马鱼，提高激发光能量后双光子依然能够顺利成像，如图 6.13 所示：

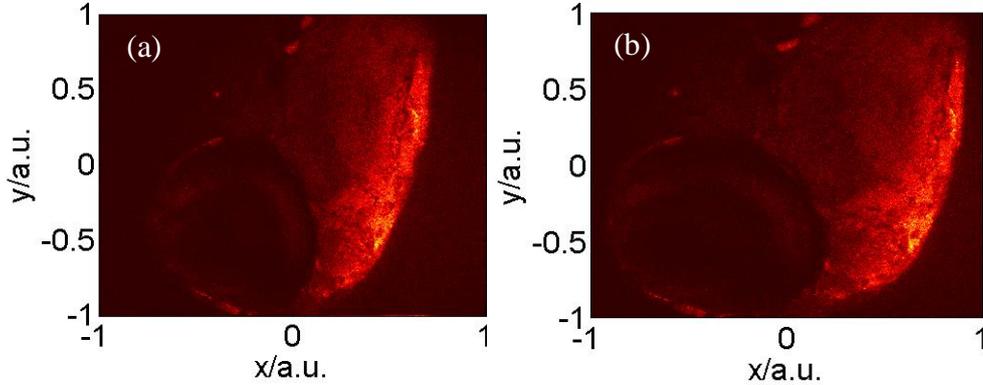


图 6.13 快扫双光子对活体斑马鱼成像：(a) 原始图像；(b) 畸变校正图像；
激光参数为 100 mW @805 nm

Fig. 6.13 Fast two-photon imaging of live zebra fish at 805 nm: (a) initial image;
(b) revised image

可以发现，双光子成像能够看到活体的各个层析图，快扫目前没有配备层扫功能，暂时无法呈现三维图像，但是作为激发光源而言，其双光子激发没有问题。快扫双光子另外一个特点是大视场，实验上扩大扫描范围，得到下面图像：

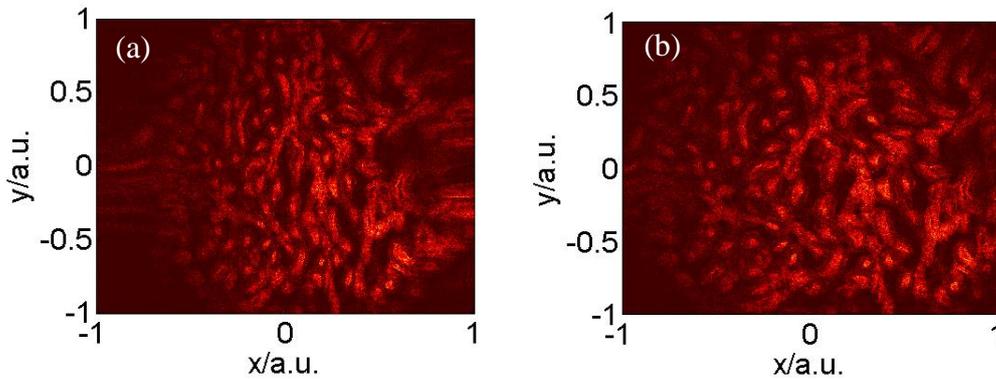


图 6.14 快扫双光子宽视场成像：(a)原始图像；(b)畸变校正图像
激光参数为 100 mW @805 nm

Fig. 6.14 Fast two-photon imaging in large view at 805 nm: (a) initial image;
(b) revised image

此外，我们对比了用商业激光器成像的图像，结果如图 6.15 所示，从成像效果来看，我们搭建的多波长可调谐激光光源和商用激光光源没有本质差别。

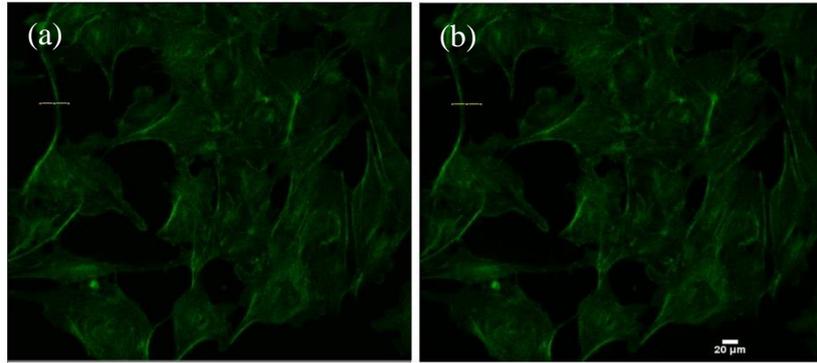


图 6.15 小牛肺动脉内皮细胞扫描成像局部：(a) 原始图像；(b) 畸变校正图像

Fig. 6.15 Fast two-photon imaging of calf pulmonary artery: (a) initial image;
(b) revised image

6.2.4 扫描共聚焦显微镜层扫成像实验

利用飞秒 OPO 多波长可调谐激光器结合扫描共聚焦显微镜对小鼠肾脏细胞厚切片做了层扫成像，激光器输出波长 750 nm，重复频率 151 MHz，到达样品处的功率为 6 mW，细胞样品固定在载物台上，整体扫描厚度为约 2 μm，总共进行 100 层扫描，每层约为 20 nm，由于三维实验结果数据很大，我们只截取了几个截面图，结果如图 6.16 所示，从重建结果看，系统是双光子激发，能够分开厚细胞的各个层次，达到了理想的实验结果。

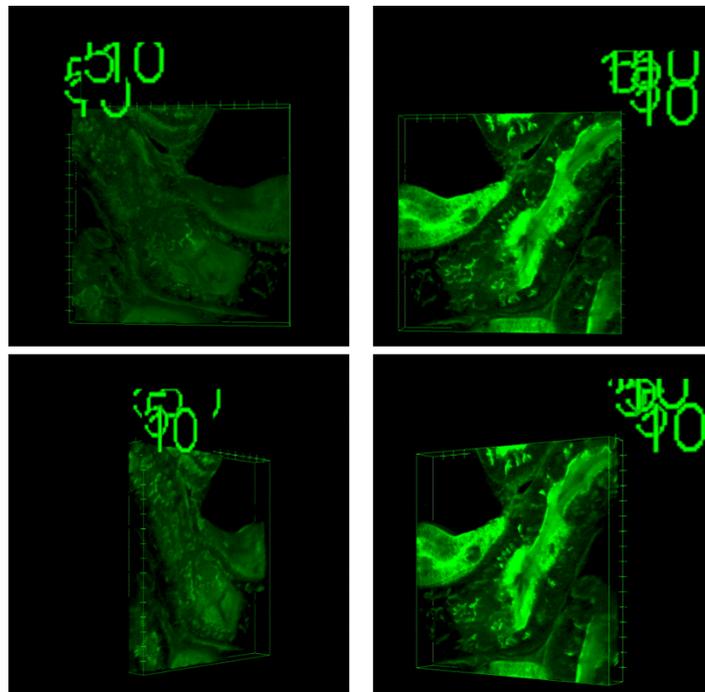


图 6.16 双光子显微镜层扫成像数据截面图

Fig. 6.16 The cross-sectional view of two-photon imaging

6.2.5 双光子 STED 实验

为了进一步提高显微成像分辨率，1994 年德国科学家 Stefan W. Hell 首次提出了受激发射损耗（STED）显微成像技术，STED 双光子成像系统中需要两束激光，其中一束为激发光，用来照射被荧光标记的样品，使荧光分子由基态跃迁到激发态，而另一束为损耗光，用来淬灭焦斑周围上的激发态荧光分子，进而限制有效荧光发光面积，最终获得小于衍射极限的光点，从而实现超过衍射极限的分辨率。STED 双光子技术的核心理论就是将损耗光经过相位调制后变成一个中空型的面包圈，利用受激辐射的原理，把激发光光斑边缘区域的激发态电子迅速消耗，最终减小有效发光面积。我们利用多波长、宽带可调谐飞秒激光器与苏州医工所另外一个课题组进行了飞秒 STED 双光子实验研究，实验装置如图 6.17 所示：



图 6.17 双光子 STED 实验现场实物照片

Fig. 6.17 Real picture of STED two-photon imaging

将飞秒 OPO 激光器输出波长设定在 712 nm，并将此激光作为激发光，同时引入 519 nm 的连续光作为 STED 光，先将 712 nm 激发光偏振方向进行选偏调整成圆偏振，接着把 519 nm 的连续光选成圆偏振后再经过相位板进行调制，由高斯光束变为拉盖尔光束（中心光斑能量最弱，光斑成圆环状），把这两束激光进行合束，最后入射到 110 nm 的荧光小球上。如图 6.18 所示：

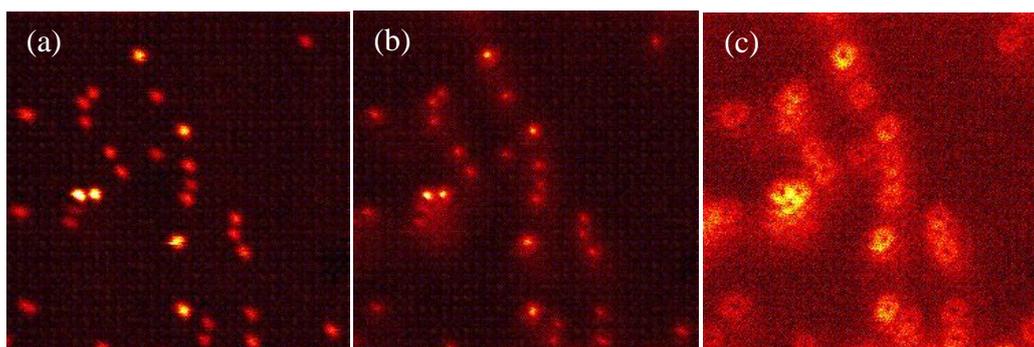


图 6.18 110 nm 荧光小球: (a) 只有 712nm; (b) 712nm+519nm; (c) 只有 519nm

Fig. 6.18 The fluorescent globule with a diameter of 110 nm:

(a) 712 nm; (b) 712 nm+519 nm; (c) 519 nm

通过对比图 6.18 (a) 和 (b) 可以发现, 加入 STED 光 (519 nm 连续光) 后, 图 (a) 中的小球明显变小, 分辨率得到提升, 但是小球周围存在一些模糊的“云”, 这些“云”是由 STED 光激发所致。图 6.19 是大视场范围下, 利用 STED 双光子显微镜照射的 110 nm 荧光小球的图像, 可以看出加了 STED 光后, 分辨率会有所提升。

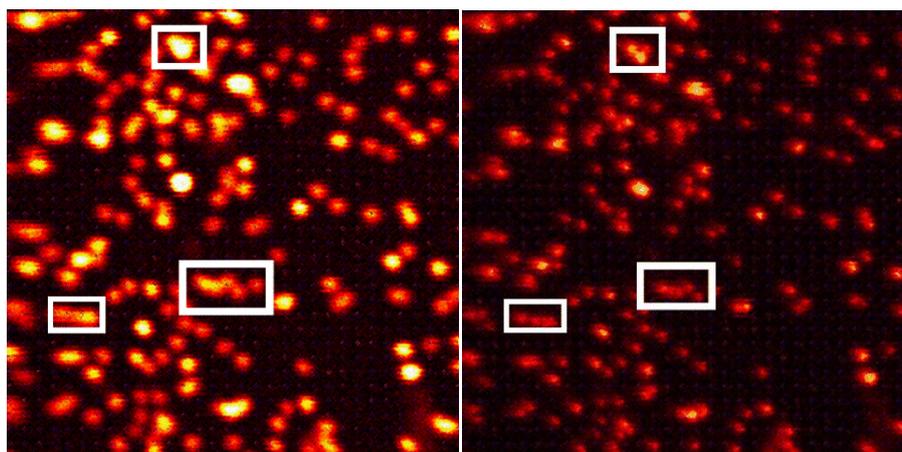


图 6.19 大视场下的 110 nm 荧光小球: (a) 712nm; (b) 712nm+519nm

Fig. 6.19 STED two-photon imaging in large view: (a) 712 nm;

(b) 712 nm+519 nm; (c) 519 nm

6.3 本章小结

本章首先介绍了宽带可调谐飞秒 OPO 的样机设计与搭建, 接下来重点介绍了基于自主研发的飞秒 OPO 结合显微镜在神经显微成像方面的应用, 取得了不

错的实验结果。这种自主研发的高功率宽带可调谐的飞秒 OPO 光源为双光子显微成像技术提供了强有力的驱动源，为后续的产业化发展奠定了基础。

第 7 章 总结与展望

全固态超短脉冲激光器具有高功率、高重复频率的特点,可实现连续光输出,也可以实现纳秒、皮秒甚至亚 50 fs 的脉冲激光输出,成为获得高功率光学参量振荡器的理想泵浦源。受限于 Yb^{3+} 增益介质的发射谱宽,全固态超短脉冲激光器的输出波长被限定在比较窄的光谱范围内。通过非线性光学频率变换技术可以将近红外波段的飞秒激光转换为紫外、可见光甚至中红外宽光谱范围内的连续可调谐超短脉冲激光。这种高功率、宽带可调谐超短脉冲激光在诸多领域都有极其重要的应用,因此发展新型宽带可调谐的飞秒激光光源具有十分重要的意义。针对这一研究背景,本文紧紧围绕高功率宽带可调谐的超短脉冲激光器在飞秒激光领域的应用,综合本论文各章内容,具体研究结果和内容总结如下:

1. 以 Yb:KGW 全固态飞秒振荡器作为泵浦源,结合非线性晶体 KTA 和 KTP ,开展了近红外-中红外波段飞秒 OPO 实验研究。利用 KTA 晶体,最终实现了高功率宽带可调谐的 1.41-1.71 μm 信号光和 2.61-3.84 μm 闲频光输出,其中信号光最大功率为 2.32 W,闲频光最大功率为 1.31 W,整体转换效率为 51.8%。采用啁啾镜进行腔内色散补偿,获得的最短脉冲宽度为 129 fs,接近傅里叶极限变换脉宽,相关工作已经发表在 **Optics Letter 43 (4), 943-946 (2018)**。
2. 开展了 515 nm 飞秒激光泵浦 BIBO-OPO 实验,对比了重复频率在 75.5 MHz、151 MHz 和 755 MHz 条件下,OPO 激光的输出特性。实验中发现信号光和闲频光的光谱调谐范围、脉冲宽度、平均输出功率等没有明显差别,但是随着重复频率的增加,OPO 腔长容忍量和功率稳定性逐渐下降,并对这一变化进行了理论分析。当重复频率为 75.5 MHz 时,实现了高功率可调谐的可见光-近红外波段的飞秒激光输出,信号光光谱调谐范围在 639-1000 nm,对应的闲频光光谱范围在 1061-2005 nm,整个信号光范围内的平均功率均高于 400 mW。利用该可调谐光源,进行了信号光腔外倍频实验,最终实现了 350-488 nm 的可调谐紫外飞秒激光输出。相关工作已经整理并投稿到 **Optics Express**,并申请了国家发明专利(201610003424.2)。
3. 研究了飞秒 BIBO-OPO 的信号光双波长输出特性,对双波长的产生进行了理

论分析，实验中发现双波长的运转并不完全决定于谐振腔内的净零色散，当泵浦光的峰值功率较高时，相位匹配条件并不是十分严格，平衡信号光双波长与泵浦光之间的相位匹配与群速度失配尤为重要，最终在重复频率 151 MHz 条件下，实现了 710-1000 nm 范围内的可调谐双波长信号光输出，相关工作已经发表在 **Applied Physics B 124:9 (2018)**。

4. 开展了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 激光器的锁模实验研究，从理论上解释了飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 的锁模机制，飞秒激光同步泵浦 Ti:sapphire 产生锁模脉冲过程中，除了要考虑自相位调制作用以外，互相位调制作用更为重要，Ti:sapphire 激光实现锁模来源于泵浦光和锁模激光相互叠加引起的非线性耦合效应。通过实验最终实现了高重频、自启动的 Ti:sapphire 锁模飞秒激光输出，锁模激光的重复频率为 151 MHz，是泵浦源的 2 倍。在使用啁啾镜和尖劈对进行色散补偿的条件下，获得的锁模激光脉冲宽度为 12.7 fs。相关工作已经发表在 **Journal of the Optical Society of America B 35 (5), 967-971 (2018)**，并申请了国家发明专利（201610590083.3）。
5. 利用 Yb:KGW 和 Yb:CGA 晶体开展了高功率被动锁模实验研究，通过合理设计谐振腔腔型，实现了高功率锁模飞秒、皮秒激光输出。实验中采用半导体激光器作为泵浦源，基于 Yb:KGW 晶体，获得了平均功率 7.6 W，单脉冲能量 97 nJ，峰值功率 0.606 MW 的高功率锁模飞秒激光。最后介绍了高功率被动锁模 Yb:CGA 皮秒振荡器，实现了耗散孤子锁模，获得了平均功率 10.3 W，单脉冲能量 127 nJ 的高功率锁模皮秒激光输出。
6. 利用宽带可调谐飞秒 OPO 光源进行了神经显微成像的研究，首先对 OPO 激光系统进行了工程化设计，利用自主研发的宽带可调谐 OPO 作为驱动源，与中国科学院苏州医工所合作，成功开展了双光子显微成像实验研究，取得了比较好的实验结果，实验证明采用自主研发的宽带可调谐飞秒 OPO 光源得到的生物成像效果与商业激光器相差不大。这种自主研发的宽带可调谐的飞秒 OPO 光源为双光子显微成像技术提供了强有力的驱动源，为后续产业化发展奠定了基础。

本论文中的工作开始于 2015 年 8 月，至 2018 年 5 月结束，尽管取得了初步的实验结果，但是仍有很大的发展空间，主要包括以下几个方面：

1. 对于高功率宽带可调谐的飞秒 OPO 超快光源，需要在谐振腔内加入电路反馈系统，同时锁定 OPO 腔长，从而进一步提高输出信号光光谱和功率的稳定性。利用高功率的飞秒中红外激光作为驱动源，结合固体材料，进行固体高次谐波实验。同时也可以结合准相位匹配晶体（如 MgO:PPLN），产生白光超连续。最后可以利用腔内倍频、和频方式，进一步将光谱范围拓宽到紫外、深紫外波段。
2. 对于飞秒激光同步泵浦的 Ti:sapphire 激光器，通过合理设计腔型，进一步缩短腔长，最终实现重复频率为 GHz 的自启动锁模飞秒激光运转。
3. 对于高功率全固态掺 Yb³⁺飞秒振荡器，可以采用克尔透镜锁模方式，引入薄片激光器的谐振腔腔型，将增益介质与克尔锁模介质分开，从而实现平均功率在瓦量级，脉冲宽度小于 100 fs 的锁模激光输出。

参考文献

- [1] H. Niikura, R. Hasbani. Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics. *Nature* **417** 917-922 (2002)
- [2] 张志刚. 飞秒激光脉冲技术与应用. 北京: 科学出版社, 2005
- [3] A. Couairon, A. Mysyrowicz. Femtosecond filamentation in transparent media. *Journal of Modern Optics*. *Physics Reports* **441** 47-189 (2007)
- [4] K. Yamanouchi, A. Becker, R. Li, S. L. Chin. Progress in ultrafast intense laser science IV. *Springer* (2009)
- [5] R. L. Byer. Diode Laser Pumped Solid-State Lasers. *Science* **239** 742-747 (1988)
- [6] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature* **187** 493-494 (1960)
- [7] F. J. McClung, R. W. Hellwarth. Giant optical pulsation from ruby. *J. Appl. Phys.* **33** 828-829 (1962)
- [8] A. J. D. Maria, D. A. Stetser, H. Heynau. Self mode-locking of lasers with Saturable absorbers. *Appl. Phys. Lett.* **8** 174-176 (1966)
- [9] R. L. Fork, B. I. Greene, C. V. Shank. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Appl. Phys. Lett.* **38**(9) 671-672 (1981)
- [10] J. A. Valdmanis, R. L. Fork, J. P. Gordon. Generation of optical pulse as short as 27 femtosecond intra-cavity directly from a laser and balancing self-phase modulation, group-velocity dispersion, saturable absorption and saturable gain, *Opt. Lett.* **10**(3) 131-133 (1985)
- [11] R. L. Fork, C. H. B. Cruz, P. C. Becker, C. V. Shank. Compression of optical pulses to six femtosecond by using cubic phase compensation. *Opt. Lett.* **12**(7) 483-485 (1987)
- [12] D. E. Spence, P. N. Kean, W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **16**(1) 42-44 (1991)
- [13] H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen. Structures for additive pulse mode locking, *J. Opt. Soc. Am. B* **8**(10) 2068-2076 (1991)

- [14] U. Morgner, F. X. Kärtner, S.-H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi. Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **24**(6) 411-413 (1999)
- [15] K. Yamane, T. Kito, R. Morita, M. Yamashita. 2.8-fs transform-limited optical-pulse generation in the monocycle region. Lasers and Electro-Optics, (CLEO) Conference on 1045-1047 (2004)
- [16] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz. Femtosecond Ti:sapphire ring laser with a 2-GHz repetition rate and its application in time-resolved spectroscopy. *Opt. Lett.* **24**(14) 996-998 (1999)
- [17] A. Bartels, D. Heinecke, S. A. Diddams. Passively mode-locked 10 GHz femtosecond Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **33**(16) 1905-1907 (2008)
- [18] R. Ell, G. Angelow, W. Seitz, M. J. Lederer, H. Huber, D. Kopf, J. R. Birge, F. X. Kärtner. Quasi-synchronous pumping of mode locked few-cycle titanium sapphire lasers. *Opt. Express* **13**(23) 9292-9298 (2005)
- [19] N. V. Didenko, A. V. Konyashchenko, D. A. Konyashchenko, P. V. Kostryulov, A. P. Lutsenko, A. O. Mavritskiy. Ti:sapphire laser synchronised with femtosecond Yb pump laser via nonlinear pulse coupling in Ti:sapphire active medium. *Quantum Electron.* **47** 7-13 (2017)
- [20] F. Brunner, G. J. Spühler, J. Aus der Au, L. Krainer, F. Morier-Genoud, R. Paschotta, N. Lichtenstein, S. Weiss, C. Harder, A. A. Lagatsky, A. Abdolvand, N. V. Kuleshov, U. Keller. Diode-pumped femtosecond Yb:KGd(WO₄)₂ laser with 1.1-W average power. *Opt. Lett.* **25**(15) 1119-1121 (2000)
- [21] A. Courjaud, N. Deguil, F. Salin. High-power diode-pumped Yb:KGW ultrafast laser. Lasers and Electro-Optics, (CLEO) Conference on 501-502 (2002)
- [22] F. Hoos, T. P. Meyrath, S. Li, B. Braun, H. Giessen. Femtosecond 5-W Yb:KGW slab laser oscillator pumped by a single broad-area diode and its application as supercontinuum source. *Appl. Phys. B* **96**(1) 5-10 (2009)
- [23] Zaouter Y, Didierjean J, Balembois F, G. Lucas Leclin, F. Druon, P. Georges, J.

- Petit, P. Goldner, B. Viana. 47-fs diode-pumped Yb³⁺:CaGdAlO₄ laser. *Opt. Lett.* **31**(1) 119-121 (2006)
- [24] A. Greborio, A. Guandalini, J. A. der Au. Sub-100 fs pulses with 12.5-W from Yb:CALGO based oscillators. *International Society for Optics and Photonics* 823511-823516 (2012)
- [25] A. Klenner, M. Golling, U. Keller. High peak power gigahertz Yb:CALGO laser. *Opt. Express* **22**(10) 11884-11891 (2014)
- [26] J. C. Diels, W. Rudolph. Ultrashort laser pulse phenomena. (2006)
- [27] R. Danielius, A. Piskarskas, A. Stabinis, G. P. Banfi, P. Di Trapani, R. Righini. Traveling-wave parametric generation of widely tunable, highly coherent femtosecond light pulses. *J. Opt. Soc. Am. B* **10**(11) 2222-2232 (1993)
- [28] A. Dubietis, R. Butkus, A. Piskarskas. Trends in chirped pulse optical parametric amplification. *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.* **12**(2) 163-172 (2006)
- [29] G. Cerullo, S. De Silvestri. Ultrafast optical parametric amplifiers. *Rev. Sci. Instrum.* **74**(1) 1-18 (2003)
- [30] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack. Generation of high-power femtosecond light pulses at 1 k Hz in the mid-infrared spectral range between 3 and 12 μm by second-order nonlinear processes in optical crystals. *J. opt. A, Pure and applied optics (Print)* **3**(3) 1-19 (2001)
- [31] S. Tzortzakis, D. Anglos, D. Gray. Ultraviolet laser filaments for remote laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) analysis: applications in cultural heritage monitoring. *Opt. Lett.* **31**(8) 1139-1141 (2006)
- [32] V. H. Vilehiz, J. A. KloePfer, A. C. Germaine, V. A. Lenehenkov, S. E. Bradforth. Map for the Relaxation Dynamics of Hot Photoelectrons Injected into Liquid Water via Anion Threshold Photodetaachment and above Threshold Solvent Ionization. *Phys. Chem. A* **105** 1711-1723 (2001)
- [33] J. Pecourt, J. peon, B. Kohler. DNA Excited-State Dynamics: Ultrafast Internal Conversion and Vibrational Cooling in a Series of Nucleosides. *J. Am. Chem. Soc.*

- 123**(42) 10370-10378 (2001)
- [34]S. Ullrich, T. Schultz, M. Z. Zgierski, A. Stolow. Direct Observation of Electronic Relaxation Dynamics in Adenine via Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy. *J. Am. Chem. Soc.* **126** 2262-2263 (2004)
- [35]M. Barbatti, A. Aquino, J. szymczak, D. Nachtigallová P. Hobza, H. Lischk. Relaxation mechanisms of UV-photoexcited DNA and RNA nucleobases. *PNAS* **107** 21453-21458 (2010)
- [36]N. A. Anderson, C. G. Durfee, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, R. J. Sension. The internal conversions of trans-and cis-1, 3, 5-hexatriene in cyclohexane solution studied with sub-50 fs UV pulses. *Chem. Phys. Lett.* **323** 365-371 (2000)
- [37]A. C. Moskun, S. E. Bradforth. Photodissociation of ICN in Polar solvents: evidence of long lived rotational excitation in real liquids. *J. Chem. Phys.* **119**(8) 4500-4515 (2003)
- [38]I. V. Hertel, V. Radloff. Ultrafast dynamics in isolated molecules and molecular clusters. *Reports on Progress in Physics* **69** 1897-2003 (2006)
- [39]E. M. Zadeh. Mid-infrared ultrafast and continuous-wave optical parametric oscillators, Solid-state mid-infrared laser sources, *Springer Berlin Heidelberg* **89** 184-224 (2003)
- [40]R. H. Kingston. Parametric amplification and oscillation at optical frequencies. *Proc. IRE* **50** 472 (1962)
- [41]S. Kielich. Optical harmonic generation and laser light frequency mixing processes in nonlinear media. *Opto-electronics* **2**(3) 125-151 (1970)
- [42]N. M. Kroll. Parametric amplification in spatially extended media and application to the design of tunable oscillators at optical frequencies. *Phys. Rev.* **127**(4) 1207-1211 (1962)
- [43]J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan. Interaction between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.* **127**(6) 1918-1939 (1962)
- [44]J. A. Giordmaine, R. C. Miller. Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO₃

- at optical frequencies. *Phys. Rev. Lett.* **14**(24) 973-976 (1965)
- [45] Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R. L. Byer, R. K. Route, R. S. Feigelson. AgGaS₂ infrared parametric oscillator. *Appl. Phys. Lett.* **45**(4) 313-315 (1984)
- [46] M. J. Rosker, C. L. Tang. Widely tunable optical parametric oscillator using urea. *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 691-696 (1985)
- [47] L. K. Cheng, W. R. Bosenberg, C. L. Tang. Broadly tunable optical parametric oscillation in β -BaB₂O₄. *Appl. Phys. Lett.* **53**(3) 175-177 (1988)
- [48] M. Ebrahim-Zadeh, A. J. Henderson, M. H. Dunn. An Excimer-pumped β -BaB₂O₄ optical parametric oscillator tunable from 354 nm to 2.370 μ m. *IEEE J. Quantum Electron.* **26** 1241-1252 (1990)
- [49] D. C. Edelstein, E. S. Wachman, C. L. Tang. Broadly tunable high repetition rate femtosecond optical parametric oscillator. *Appl. Phys. Lett.* **54**(18) 1728-1730 (1989)
- [50] Tolga Kartaloğlu, Kahraman G. Köprülü, Orhan Aytür, Michael Sundheimer, William P. Risk. Femtosecond optical parametric oscillator based on periodically poled KTiOPO₄. *Opt. Lett.* **23**(1) 61-63 (1998)
- [51] S. W. McCahon, S. A. Anson, D.-J. Jang, Thomas F. Boggess. Generation of 3-4 μ m femtosecond pulses from a synchronously pumped, critically phase-matched KTiOPO₄ optical parametric oscillator. *Opt. Lett.* **20**(22) 2309-2311 (1995)
- [52] D. E. Spence, S. Wielandy, C. L. Tang, C. Bosshard, P. Günter. High average power, high-repetition rate femtosecond pulse generation in the 1-5 μ m region using an optical parametric oscillator. *Appl. Phys. Lett.* **68**(4) 452-454 (1996)
- [53] Q. Fu, G. Mak, H. M. van Driel. High-power, 62-fs infrared optical parametric oscillator synchronously pumped by a 76-MHz Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **17**(14) 1006-1008 (1992)
- [54] P. E. Powers, R. J. Ellingson, W S. Pelouch, C. L. Tang. Recent advances of the Ti:sapphire-pumped high-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator. *J. Opt. Soc. Am. B* **10**(11) 2162-2167 (1993)

- [55] W S. Pelouch, P. E. Powers, C. L. Tang. Ti:sapphire-pumped, high-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator. *Opt. Lett.* **17**(15) 1070-1072 (1992)
- [56] M. E. Zadeh, M. H. Dunn. Optical Parametric Oscillators. *Nonlinear and Quantum Optics* Chapter 22 (2001)
- [57] K. P. Petrov, R. F. Curl, F. K. Tittel. Compact laser difference-frequency spectrometer for multicomponent trace gas detection. *Appl. Phys. B* **66**(5) 531-538 (1998)
- [58] L. R. Marshall, J. Kasinski, A. D. Hays, R. L. Burnham. Efficient Optical Parametric Oscillation at 1.6 μm . *Opt. Lett.* **16**(9) 681-683 (1991)
- [59] J. Hellstrom, V. Pasiskevicius, F. Laurell, H. Karlsson. Efficient Nanosecond Optical Parametric Oscillators Based on Periodically Poled KTP Emitting in the 1.8-2.5 μm Spectral Range. *Opt. Lett.* **24**(17) 1233-1235 (1999)
- [60] B. G. Ageev, Y. N. Ponomarev, V. A. Sapozhnikova. Laser photoacoustic spectroscopy of biosystems gas exchange with the atmosphere. *Appl. Phys. B* **67** 467-473 (1998)
- [61] F. G. C. Bijnen, F. J. M. Harren, J. H. P. Hackstein, J. Reuss. Intracavity CO laser photoacoustic trace gas detection-cyclic CH_4 , H_2O and CO_2 emission by cockroaches and scarab beetles. *Appl. Opt.* **35**(27) 5357-5368 (1996)
- [62] D. E. Cooper, R. U. Martinelli, C. B. Carlisle, H. Riris, D. B. Bour, R. J. Menna. Measurements of $^{12}\text{CO}_2$: $^{13}\text{CO}_2$ ratios for medical diagnostics with 1.6-micron distributed-feedback semiconductor diode lasers. *Appl. Opt.* **32**(33) 6727-6731 (1993)
- [63] D. Richter, A. Fried, B. P. Wert, J. G. Walega, F. K. Tittel. Development of a tunable mid-IR difference-frequency laser source for highly sensitive airborne trace gas detection. *Appl. Phys. B* **75** 281-288 (2002)
- [64] P. Bergamaschi, M. Schupp, G. W. Harris. High-precision direct measurements of $^{13}\text{CH}_4$ / $^{12}\text{CH}_4$ and $^{12}\text{CH}_3\text{D}$ / $^{12}\text{CH}_4$ ratios in atmospheric methane sources by means of a long-path tunable diode laser absorption spectrometer. *Appl. Opt.* **33**(33) 7704-

- 7716 (1994)
- [65] P. Loza-Alvarez, C. T. A. Brown, D. T. Reid, W. Sibbett, M. Missey. High-repetition-rate ultrashort-pulse optical parametric oscillator continuously tunable from 2.8 to 6.8 μm . *Opt. Lett.* **24**(21) 1523-1525 (1999)
- [66] V. Ramaiah-Badarla, S. Chaitanya Kumar, A. Esteban-Martin, K. Devi, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, M. Ebrahim-Zadeh. Ti:sapphire-pumped deep-infrared femtosecond optical parametric oscillator based on CdSiP₂. *Opt. Lett.* **41**(8) 1708-1711 (2016)
- [67] Callum F. O'Donnell, S. Chaitanya Kumar, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, M. Ebrahim-Zadeh. Critically phase-matched Ti:sapphire-laser-pumped deep-infrared femtosecond optical parametric oscillator based on CdSiP₂. *Opt. Lett.* **43**(7) 1507-1510 (2018)
- [68] K. L. Vodopyanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback, W. Ruderman. AgGaS₂ optical parametric oscillator continuously tunable from 3.9 to 11.3 μm . *Appl. Phys. Lett.* **75** 1204-1206 (1999)
- [69] K. L. Vodopyanov, F. Ganikhanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback, W. Ruderman. ZnGeP₂ optical parametric oscillator with 3.8-12.4 μm tenability. *Opt. Lett.* **25**(11) 841-843 (2000)
- [70] D. E. Zelmon, E. A. Hanning, P. G. Schunemann. Refractive-index measurements and Sellmeier coefficients for zinc germanium phosphide from 2 to 9 μm with implications for phase matching in optical frequency-conversion devices. *J. Opt. Soc. Am. B* **18**(9) 1307-1310 (2001)
- [71] R. F. Wu, K. S. Lai, H. F. Wong, W. J. Xie, Y. L. Lim, E. Lau. Multiwatt mid-IR output from a Nd:YALO laser pumped intracavity KTA OPO. *Opt. Express* **8**(13) 694-698 (2001)
- [72] J. Hellström, V. Pasiskevicius, F. Laurell, H. Karlsson. Efficient nanosecond optical parametric oscillators based on periodically poled KTP emitting in the 1.8-2.5- μm spectral region. *Opt. Lett.* **24**(17) 1233-1235 (1999)

- [73] T. Südmeyer, J. A. D. Au, R. Paschotta, U. Keller, P. G. R. Smith, G. W. Ross, D. C. Hanna. Novel ultrafast parametric systems: high repetition rate single-pass OPG and fiber-feedback OPO. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **34**(16) 2433-2439 (2001)
- [74] S. Chaitanya Kumar, A. Esteban-Martin, A. Santana, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, M. Ebrahim-Zadeh. Pump-tuned deep-infrared femtosecond optical parametric oscillator across 6-7 μm based on CdSiP₂. *Opt. Lett.* **41**(14) 3355-3358 (2016)
- [75] S. Chaitanya Kumar, J. Krauth, A. Steinmann, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, H. Giessen, M. Ebrahim-Zadeh. High-power femtosecond mid-infrared optical parametric oscillator at 7 μm based on CdSiP₂. *Opt. Lett.* **40**(7) 1398-1401 (2015)
- [76] J. Zhang, K. F. Mak, N. Nagl, M. Seidel, D. Bauer, D. Sutter, V. Pervak, F. Krausz, O. Pronin. Multi-mW, few-cycle mid-infrared continuum spanning from 500 to 2250 cm^{-1} . *Light: Science & Applications* **7**(2) 17180 (2018)
- [77] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn. 16-fs, 1- μJ ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air. *Opt. Lett.* **21**(9) 665-667 (1996)
- [78] C. G. Durfee, S. Backus, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane. Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet. *Opt. Lett.* **24**(10) 697-699 (1999)
- [79] A. E. Jailaubekov, S. E. Bradforth. Tunable 30-femtosecond pulses across the deep ultraviolet. *Appl. Phys. Lett.* **87**(2) 1-3 (2005)
- [80] T. Fuji, T. Horio, T. Suzuki. Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas. *Opt. Lett.* **32**(17) 2481-2483 (2007)
- [81] M. Ghothi, P. Trabs, M. Beutler. Generation of high-energy, sub-20-fs Pulses in the deep ultraviolet by using spectral broadening during filamentation in argon. *Opt. Lett.* **36**(4) 463-465 (2011)
- [82] M. Ghotbi, A. Esteban-Martin, M. Ebrahim-Zadeh. Tunable, high-repetition-rate, femtosecond pulse generation in the ultraviolet. *Opt. Lett.* **33**(4) 345-347 (2008)
- [83] C. Gu, M. Hu, L. Zhang, J. Fan, Y. Song, C. Wang, D. T. Reid. High average power,

- widely tunable femtosecond laser source from red to mid-infrared based on an Yb-fiber-laser-pumped optical parametric oscillator. *Opt. Lett.* **38**(11) 1820-1822 (2013)
- [84] C. Gu, M. Hu, J. Fan, Y. Song, B. Liu, L. Chai, C. Wang, D. T. Reid. High power tunable femtosecond ultraviolet laser source based on an Yb-fiber-laser pumped optical parametric oscillator. *Opt. Express.* **23**(5) 6181-6186 (2015)
- [85] R. Hegenbarth, A. Steinmann, G. Tóth, J. Hebling, H. Giessen. Two-color femtosecond optical parametric oscillator with 1.7 W output pumped by a 7.4 W Yb:KGW laser. *J. Opt. Soc. Am. B* **28**(5) 1344-1352 (2011)
- [86] T. Lang, T. Binhammer, S. Rausch, G. Palmer, M. Emons, M. Schultze, A. Harth, U. Morgner. High power ultra-widely tuneable femtosecond pulses from a non-collinear optical parametric oscillator (NOPO). *Opt. Express.* **20**(2) 912-917 (2012)
- [87] A. Wirth, M. Th. Hassan, I. Grguras, J. Gagnon, A. Moulet, T. T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z. A. Alahmed, A. M. Azzeer, V. S. Yakovlev, V. Pervak, F. Krausz, E. Goulielmakis. Synthesized light transients. *Science* **334**(7) 195-200 (2011)
- [88] K. C. Burr, C. L. Tang. High-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate. *Appl. Phys. Lett.* **70**(25) 3341-3343 (1997)
- [89] S. A. Diddams, L. Ma, J. Ye, J. L. Hall. Broadband optical frequency comb generation with a phase-modulated parametric oscillator. *Opt. Lett.* **24**(23) 1747-1749 (1999)
- [90] V. Ulvila, C. R. Phillips, L. Halonen, M. Vainio. High-power mid-infrared frequency comb from a continuous-wave-pumped bulk optical parametric oscillator. *Opt. Express.* **22**(9) 10535-10543 (2014)
- [91] M. W. Haakestad, T. P. Lamour, N. Leindecker, A. Marandi, K. L. Vodopyanov. Intracavity trace molecular detection with a broadband mid-IR frequency comb source. *J. Opt. Soc. Am. B* **30**(3) 631-640 (2013)
- [92] F. Adler, P. Masłowski, A. Foltynowicz, K. C. Cossel, T. C. Briles, I. Hartl, J. Ye.

- Mid-infrared Fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb. *Opt. Express*. **18**(21) 21861-21872 (2010)
- [93] K. F. Lee, C. Mohr, J. Jiang, P. G. Schunemann, K. L. Vodopyanov, M. E. Fermann. Mid infrared frequency comb from self-stable degenerate GaAs optical parametric oscillator. *Opt. Express*. **23**(20) 26596-26603 (2015)
- [94] K. Balskus, S. Schilt, V. J. Wittwer, P. Brochard, T. Ploetzing, N. Jornod, R. A. McCracken, Z. Zhang, A. Bartels, D.T. Reid, T. Südmeyer. Frequency comb metrology with an optical parametric oscillator. *Opt. Express*. **24**(8) 8370-8381 (2016)
- [95] R. A. McCracken, K. Balskus, Z. Zhang, D. T. Reid. Atomically referenced 1-GHz optical parametric oscillator frequency comb. *Opt. Express*. **23**(12) 16466-16472 (2015)
- [96] T. I. Ferreiro, J. Sun, D. T. Reid. Frequency stability of a femtosecond optical parametric oscillator frequency comb. *Opt. Express*. **19**(24) 24159-24164 (2011)
- [97] F. Adler, K. C. Cossel, M.J. Thorpe, I. Hartl, M. E. Fermann, J. Ye. Phase-stabilized, 1.5 W frequency comb at 2.8-4.8 μm . *Opt. Lett.* **34**(9) 1330-1332 (2009)
- [98] N. Coluccelli, A. Gambetta, T. Sala, D. Gatti, M. Marangoni, P. Laporta, G. Galzerano. Frequency-stabilized 1 W optical comb at 2.2-2.6 μm by $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ multipass amplification. *Opt. Lett.* **37**(21) 4440-4442 (2012)
- [99] R. Gebs, T. Dekorsy, S. A. Diddams, A. Bartels. 1-GHz repetition rate femtosecond OPO with stabilized offset between signal and idler frequency combs. *Opt. Express*. **16**(8) 5397-5405 (2008)
- [100] N. Leindecker, A. Marandi, R. L. Byer, K. L. Vodopyanov. Broadband degenerate OPO for mid-infrared frequency comb generation. *Opt. Express*. **19**(7) 6296-6302 (2011)
- [101] N. Leindecker, A. Marandi, R. L. Byer, K. L. Vodopyanov, J. Jiang, I. Hartl, M. Fermann, P. G. Schunemann. Octave-spanning ultrafast OPO with 2.6-6.1 μm instantaneous bandwidth pumped by femtosecond Tm-fiber laser. *Opt. Express*.

- 20**(7) 7046-7053 (2012)
- [102] M. Goppert-Mayer. Uber elementarakte mit zwei quantensprungen. *Annalen der Physik*, **401**(3) 273-294 (1931)
- [103] W. Kaiser, C. G. B. Garrett. Two-photon excitation in CaF₂-Eu²⁺. *Phys. Rev. Lett.* **7**(6) 229-231 (1961)
- [104] I. D. Abella. Optical Double-Photon Absorption in Cesium Vapor. *Phys. Rev. Lett.* **9**(11) 453 (1962)
- [105] W. Denk, J. H. Strickler, W. W. Webb. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy. *Science* **248**(4951) 73-76 (1990)
- [106] J. N. Anker, W. P. Hall, O. Lyandres, N. C. Shah, J. Zhao, R. P. V. Duyne. Biosensing with plasmonic nanosensors. *Nature Materials* **7** 442-453 (2008)
- [107] 沈元壤, 非线性光学原理, 上册 (顾世杰译), 北京: 科学出版社 (1987)
- [108] Y. Shen. The principles of nonlinear optics. New York, Wiley-Interscience 575 (1984)
- [109] 石顺祥, 陈国夫, 赵卫等. 非线性光学. 西安: 西安电子科技大学出版社, 153-155 (2003)
- [110] 叶佩弦. 非线性光学物理. 北京: 北京大学出版社, (2007)
- [111] C. Chen, Y. X. Fan, R. C. Eckardt. Recent developments in barium borate. *SPIE Proc.* **684** 12-20 (1987)
- [112] 张国威. 可调谐激光技术. 北京: 国防工业出版社, (1995)
- [113] 张克从, 王希敏. 非线性光学晶体材料科学. 北京: 科学出版社, (1996)
- [114] U. Keller. Recent developments in compact ultrafast lasers. *Nature* **424**(6950) 831-838 (2003)
- [115] W. 克希奈尔. 固体激光工程. 北京: 科学出版社, (2002)
- [116] G. New. Mode-locking of quasi-continuous lasers. *Opt. Commun.* **6**(2) 188-192 (1972)
- [117] H. Haus. Theory of mode locking with a slow saturable absorber. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **11**(9) 736-746 (1975)

- [118] H. A. Haus. Theory of mode locking with a fast saturable absorber. *Journal of Applied Physics* **46**(7) 3049-3058 (1975)
- [119] I. Jung, F. Kärtner, L. Brovelli, M. Kamp, U. Keller. Experimental verification of soliton mode locking using only a slow saturable absorber. *Opt. Lett.* **20**(18) 1892-1894 (1995)
- [120] F. Kärtner, U. Keller. Stabilization of solitonlike pulses with a slow saturable absorber. *Opt. Lett.* **20**(1) 16-18 (1995)
- [121] F. Kärtner, I. Jung, U. Keller. Soliton mode-locking with saturable absorbers. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **2**(3) 540-556 (1996)
- [122] R. Paschotta, U. Keller. Passive mode locking with slow saturable absorbers. *Appl. Phys. B* **73**(7) 653-662 (2001)
- [123] U. Keller. Ultrafast solid-state laser oscillators: a success story for the last 20 years with no end in sight. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **100**(1) 15-28 (2010)
- [124] M. Piché Beam reshaping and self-mode-locking in nonlinear laser resonators. *Opt. Commun.* **86**(2) 156-160 (1991)
- [125] U. Keller, G. W. 'tHooft, W. H. Knox, J. E. Cunningham. Femtosecond pulses from a continuously self-starting passively mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **16**(13) 1022-1024 (1991)
- [126] L. Spinelli, B. Couillaud, N. Goldblatt, et al. Starting and Generation of Sub-100 fs Pulses in Ti:Al₂O₃ by Self-Focusing. *Conference on Lasers and Electro-Optics*. Optical Society of America CPD7 (1991)
- [127] U. Keller, D. Miller, G. Boyd, T. H. Chiu, J. F. Ferguson, M. T. Asom. Solid-state low-loss intracavity saturable absorber for Nd: YLF lasers: an antiresonant semiconductor Fabry–Perot saturable absorber. *Opt. Lett.* **17**(7) 505-507 (1992)
- [128] R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann, F. Krausz. Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.* **19**(3) 201-203 (1994)

- [129] A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz, R. Szipöcs. Sub-10-fs mirror-dispersion-controlled Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.* **20**(6) 602-604 (1995)
- [130] F. X. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. A. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch, T. Tschudi. Design and fabrication of double-chirped mirrors. *Opt. Lett.* **22**(11) 831-833 (1997)
- [131] A. Aschwanden, D. Lorenser, H. J. Unold, R. Paschotta, E. Gini, U. Keller. 10 GHz passively mode-locked external-cavity semiconductor laser with 1.4 W average output power. *Appl. Phys. Lett.* **86** 131102 (2005)
- [132] 王胭脂, 邵建达, 晋云霞, 黄建兵, 张伟丽, 董洪成, 贺洪波, 范正修. Gires-Tournois 负色散镜误差分析. *中国激光* **36**(6) 1563-1568 (2009)
- [133] J. Heppner, J. Kuhl. Intracavity chirp compensation in a colliding pulse mode-locked laser using thin-film interferometers. *Appl. Phys. Lett.* **47** 453 (1985)
- [134] 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术. 北京: 科学出版社, (1995)
- [135] 王继扬, 吴以成. 非线性光学晶体手册. 北京: 高等教育出版社 (1999)
- [136] J. J. Huang, Y. Q. Chang, T. Shen, Y. Q. Yang. Proposal of high quality walk-off compensated sum frequency generation of ultra-short pulses. *Opt. Commun.* **281**(20) 5244-5248 (2008)
- [137] B. Dastmalchi, P. Tassin, T. Koschny, C. Soukoulis. Strong group-velocity dispersion compensation with phase-engineered sheet metamaterials. *Phys. Rev. B* **89**(11) 115123 (2014)
- [138] T. Harimoto. Simple method of optimizing second-harmonic generation under imperfect phase-mismatching conditions caused by group-velocity mismatch and group-velocity dispersion. *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**(3) 038003 (2014)
- [139] A. V. Smith, D. J. Armstrong, W. J. Alford. Increased acceptance bandwidths in optical frequency conversion by use of multiple walk-off-compensating nonlinear crystals. *J. Opt. Soc. Am. B* **15**(1) 122-141 (1998)
- [140] R. J. Gehr, M. W. Kimmel, A. V. Smith. Simultaneous spatial and temporal walk-off compensation in frequency-doubling femtosecond pulses in beta-BaB₂O₄.

- Opt. Lett.* **23**(16) 1298-1300 (1998)
- [141] W. J. Alford, A. V. Smith. Frequency-doubling broadband light in multiple crystals. *J. Opt. Soc. Am. B* **18**(4) 515-523 (2001)
- [142] E. Dulkeith, F. Xia, L. Schares, W. M. J. Green, Y. A. Vlasov. Group index and group velocity dispersion in silicon-on-insulator photonic wires. *Opt. Express* **14**(9) 3853-3863 (2006)
- [143] H. Hellwig, J. Liebertz, L. Bohatý. Exceptional large nonlinear optical coefficients in the monoclinic bismuth borate BiB_3O_6 (BIBO). *Solid state communications* **109**(4) 249-251 (1998)
- [144] C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, S. Lin. New nonlinear-optical crystal: LiB_3O_5 . *J. Opt. Soc. Am. B* **6**(4) 616-621 (1989)
- [145] M. C. Pujol, M. Rico, C. Zaldo, R. Solé V. Nikolov, X. Solans, M. Aguiló, F. Díaz. Crystalline structure and optical spectroscopy of Er^{3+} -doped $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ single crystals. *Appl. Phys. B* **68**(2) 187-197 (1999)
- [146] S. Biswal, S. P. O'Connor, S. R. Bowman. Thermo-optical parameters measured in ytterbium-doped potassium gadolinium tungstate. *Appl. Opt.* **44**(15) 3093-3097 (2005)
- [147] J. Petit, P. Goldner, B. Viana. Laser emission with low quantum defect in Yb:CaGdAlO_4 . *Opt. Lett.* **30**(11) 1345-1347 (2005)
- [148] W. P. Risk. Modeling of longitudinally pumped solid-state lasers exhibiting reabsorption losses. *J. Opt. Soc. Am. B* **5**(7) 1412-1423 (1988)
- [149] 李成, 霍玉晶, 何淑芳, 曹余惠. 纵向泵浦 Tm:YAG 激光器的理论研究. *光学学报* **18**(11) 1473 (1998)
- [150] 吕亮, 张永东, 王军利, 张治国, 魏志义, 张怀金. 全固态连续波 Yb:YGG 激光器的理论与实验研究. *红外与激光工程* **41**(3) 596-600 (2012)

个人简历及发表文章目录

作者简介:

孟祥昊, 男, 中共党员, 山东省枣庄人, 中国科学院物理研究所在读博士研究生。

2008年9月——2012年6月, 在兰州大学物理科学与技术学院获得学士学位;

2012年9月——2015年6月, 在中国科学院福建物质结构研究所获得硕士学位;

2015年8月——2018年6月, 在中国科学院物理研究所攻读博士学位。

获奖情况:

2017.12 中国科学院物理研究所所长奖学金表彰奖

2017-2018 中国科学院物理研究所三好学生

已发表(或正式接受)的学术论文:

[1] **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Wenlong Tian, Huijun He, Shaobo Fang, Zhiyi Wei. Watt-level widely tunable femtosecond mid-infrared KTiOAsO_4 optical parametric oscillator pumped by a $1.03 \mu\text{m}$ Yb:KGW laser. *Opt. Lett.* **43(4)**, 943-946 (2018).

[2] **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Jianwang Jiang, Wenlong Tian, Shaobo Fang, Zhiyi Wei. Self-starting 12.7 fs pulse generation from a mode-locked Ti:sapphire laser pumped by a femtosecond Yb:KGW laser. *J. Opt. Soc. Am. B.* **35(5)**, 967-971 (2018).

[3] **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Wenlong Tian, Shaobo Fang, Zhiyi Wei. Tunable, high-repetition-rate, dual-signal-wavelength femtosecond optical parametric oscillator based on BiB_3O_6 . *Appl. Phys. B.* **124:9**, (2018).

[4] Wenlong Tian, Zhaohua Wang, **Xianghao Meng**, Ninghua Zhang, Jiangfeng Zhu, Zhiyi Wei. High-power, widely tunable, green-pumped femtosecond BiB_3O_6 optical parametric oscillator. *Opt. Lett.* **41(21)**, 4851-4854 (2016).

[5] **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Shaobo Fang, Wenlong Tian, Zhiyi Wei. Self-starting 12.7 fs Ti:sapphire laser synchronously pumped by a mode-locked Yb:KGW laser. The 11th Ultrafast Optics Conference (UFO), Jackson Hole, Wyoming, in USA,

2017, poster and conference paper.

[6] **Xianghao Meng**, Wenlong Tian, Zhaohua Wang, Shaobo Fang, Zhiyi Wei. Tunable Dual-Signal Femtosecond Optical Parametric Oscillator Based On BiBO Crystal. The 8th International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves (ISUPTW), Chongqing, in China, 2016, oral and conference paper.

[7] **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Yanfang Cao, Junli Wang, Zhiyi Wei. 160 fs pulses with 7.6-W from a mode-locking Yb:KGW laser. The 3rd International Symposium on High Power Laser Science and Engineering (HPLSE), Suzhou, in China, 2018, poster and conference paper.

[8] Wenlong Tian, **Xianghao Meng**, Zhaohua Wang, Jiangfeng Zhu, Zhiyi Wei. High-efficiency LBO-based femtosecond optical parametric oscillator. The 5th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS), Pacifico Yokohama, in Japan, 2016, oral and conference paper.

[9] Zhaohua Wang, Wenlong Tian, **Xianghao Meng**, Jiangfeng Zhu, Zhiyi Wei. High-power, Mid-IR femtosecond optical parametric oscillator. The 2nd International Symposium on High Power Laser Science and Engineering (HPLSE), Suzhou, in China, 2016, oral and conference paper.

[10] 田文龙, **孟祥昊**, 王兆华, 朱江峰, 魏志义。飞秒 515 nm 激光同步泵浦的高效率光参量振荡研究. 第十一届全国激光技术与光电子学学术会议, 上海, 2016, 口头报告。

申请或已获得的专利:

1. 魏志义, 田文龙, **孟祥昊**, 王兆华, 朱江峰, 一种飞秒绿光同步泵浦的飞秒光学参量振荡器, 国家发明专利, 专利申请号: 201610003424.2
2. 魏志义, **孟祥昊**, 刘家兴, 田文龙, 王兆华, 李德华, 同步泵浦的自启动飞秒 Ti:sapphire 激光振荡器, 国家发明专利, 专利申请号: 201610590083.3

参加的研究项目及获奖情况:

- [1] 国家自然科学基金, 周期量级、超宽带超强激光光参量放大技术研究 (61575217)

- [2] 国家自然科学基金，用于超短脉冲强激光放大的等离子体背向拉曼散射技术研究（11774410）
- [3] 国家自然科学基金，亚周期光场产生中的紫外脉冲整形（61575219）
- [4] 中科院脑科学先导项目，用于神经显微成像的多波长超快激光系统（KJZDEW-L11-03）
- [5] 国家重大科学仪器设备开发专项基金，先进飞秒激光设备的产业化开发和应用（2012YQ120047）
- [6] 中国科学院战略性先导科技专项，（XDB16030200）
- [7] 中国科学院战略性先导科技专项，（XDB16030203）
- [8] 国家重点研发项目，（2017YFC0110301）

致 谢

值此论文完成之际，首先请允许我向所有曾给予我指导、帮助和鼓励的老师和同学表示由衷的感谢！

首先感谢我的导师魏志义研究员，三年的时间如白驹过隙，恩师的教诲犹在耳边。魏老师带领我走进了超快激光领域，为我确定了研究方向，并且提供了国际一流的实验条件和科研环境。魏老师丰富的经验、渊博的知识、对学科发展的战略眼光、严紧的治学作风和卓越的研究能力，无时无刻不激励着我、引导着我前行。每当我在实验中遇到困难时，与您的谈话总能让我重拾信心，有足够的勇气去面对挫折。同时魏老师经常鼓励并支持学生参加国内和国外会议，不仅开拓了我们的专业视野，也提高了大家工作的积极性。采得百花成蜜后，为谁辛苦为谁甜！三年来，魏老师不仅在学业上给我以精心的指导和全力支持，在求知道路上给予我适时的指引和无私的帮助，谆谆教诲的同时在生活上给我以无微不至的关怀，在此仅向魏老师表示我最诚挚的谢意和最崇高的敬意！

其次我要感谢王兆华副研究员对我的亲切关怀和悉心指导。本研究从论文的选题到实验方案的确定，论文中涉及的各项实验工作，无一不浸润着王老师的心血与汗水。王老师在超快激光放大领域扎实的实验功底、丰富的实验经验和开阔的眼界，让我受益匪浅。每当我在实验中遇到困难时，王老师总能在第一时间给出解决方案，帮助我渡过难关。在实验的紧要阶段，王老师亲力亲为与我一起在实验室奋斗，在您耐心细致的指导下，我的实验技能有了质的飞跃，实验也获得了成功。在平时的日常生活中，王老师与我们亦师亦友，喜欢和我们一起分享科研中的快乐，善于为我们排解压力，王老师在生活中的宽容和幽默也时常给人以积极的感染和影响。在此向王老师表示衷心的感谢！

再次我要感谢常国庆研究员，虽然我是在中途才遇到您，跟您相处的时间也不太长，但我心中总有一种相见恨晚的感觉。常老师知识渊博，高瞻远瞩，基础理论知识清楚扎实，您豁达的心胸，睿智的谈吐，积极乐观的生活态度是我一生学习的榜样；感谢赵昆副研究员，赵老师为人亲切幽默，其在阿秒科学领域强大

的理论实验功底和细腻的钻研态度让我深深敬佩。记得我的 OL 文章最初写的不是很好，是您专门为我讲解科技论文的写作原则，让我学会了如何从审稿人的角度审视自己的论文，让我至今受益匪浅，后来 OL 文章被接收绝对是您居功至伟；感谢方少波副研究员使我细致了解了相干合成的工作以及前沿进展，让我看到了超快激光另外一个世界。此外，我能够顺利完成学业，还要感谢组里的滕浩老师、贺新奎老师、韩海年老师、李德华老师、刘文军老师的悉心指导。

感谢西安电子科技大学的朱江峰教授和王军利副教授对我工作的指导和鼓励；感谢中国科学院苏州生物医学工程技术研究所的李辉研究员、张运海研究员，陈晓虎博士、杨皓旻博士在双光子显微成像实验方面的指导和帮助；感谢鲁东大学的董全力教授在论文写作方面的指导和帮助；感谢中山大学的刘伟教授在我美国开会学习期间给予的帮助和支持。

特别要感谢田文龙师兄在我科研工作中的传道、受业与解惑。我刚来到组里时，田文龙师兄就带领我接触了光参量变换的工作，勤奋刻苦、理论基础扎实、待人诚恳是我对他的第一印象。在实验中遇到困难时，我们经常讨论问题到深夜，师兄总能触摸到问题的本质，给予技术上的指导和帮助。感谢何会军在中红外光谱测量方面给予的支持和帮助；感谢梁玥瑛师妹在参量过程以及理论计算模拟方面的指导和帮助；感谢张子越师妹在光学频率梳和频谱测量方面的支持与帮助；感谢蒋建旺师弟在 Ti:sapphire 振荡器的搭建和调试方面给以的指导；感谢于洋师妹和曹艳芳师妹在全国态振荡器调试方面给以的帮助和支持。

感谢 L07 组的其他成员，包括沈忠伟师兄、张金伟师兄、范海涛师兄、钟诗阳师兄、刘家兴师兄、于子蛟师兄、何鹏师兄、范振凯师兄、吕志国师兄、秦爽师兄、刘阳阳师兄、张宁华师兄、谢阳师兄、彭英楠师姐、庞利辉师姐以及陈超、黄贯文、王敏佳、黄沛、江昱娇、黄航东、杨佩龙、王立娜、王献之、高亦谈、杨帅帅、邵晓东、宋贾俊、胡呈峰、贾浩天、程梦尧、汪会波、许思源、张志远、孙芯彤、胡忠棋、邢宇鹏、王佶、苏亚北、吕仁冲、刘励强等，大家在一起组成了温暖无比的 L07 大家庭，跟大家在一起学习、生活让我非常开心。衷心的感谢大家对我工作的支持和帮助，谢谢 L07 组温馨的大家庭。

最后要感谢我的父母，“慈母手中线，游子身上衣。临行密密缝，意恐迟迟归。谁言寸草心，报得三春晖”，感谢他们这么多年来对我不求回报的付出，他

们对我无私的爱是我前进的最大动力，我唯有不懈努力才能更好地报答他们，祝他们身体将康。

孟祥昊

2018年5月