引用格式:安岳松, 李娟, 项晓, 等. 基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生[J]. 时间频率学报, 2021, 44(2): 77-84.

基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生

安岳松^{1,2,3},李娟^{1,2},项晓^{1,2,3},刘鹏^{1,2,3},董瑞芳^{1,2,3}

(1. 中国科学院 国家授时中心 , 西安 710600 ;

2. 中国科学院 时间频率基准重点实验室, 西安 710600;

3. 中国科学院大学 天文与空间科学学院,北京 101048)

摘要:利用谐振腔的模式滤波及共振增强特性,进行了基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生的实验研究。首先从理论上简单介绍了利用大自由光谱区的谐振腔实现飞秒脉冲重频变换的原理,并通过理论研究表明:腔内功率放大倍数会随着重频的增大而减小,进而限制倍频效率的增加。在实验上采用自由光谱区为 300 MHz 的六镜环形腔及 1 mm 厚的 BIBO 倍频晶体,输入重复频率为 75 MHz 的飞秒脉冲,实现了中心波长 815 nm 的基频和 407.5 nm 的倍频飞秒脉冲输出,其重频均为 300 MHz,且重频信号的边模抑制比分别达到 30 dB 和 20 dB。本文还进一步对实验产生的双色高重频飞秒激光的倍频效率、共振光谱、光束质量等特性进行了测量分析,为后续开展高重频量子光频梳实验研究奠定了基础。

关键词: 飞秒激光; 光学谐振腔; 二次谐波产生; 高重频

DOI: 10.13875/j.issn.1674-0637.2021-02-0077-08

Generation of dual-color high repetition rate femtosecond pulses with an external frequency-doubled cavity

AN Yue-song^{1,2,3}, LI Juan^{1,2}, XIANG Xiao^{1,2,3}, LIU Peng^{1,2,3}, DONG Rui-fang^{1,2,3}

(1. National Time Service Center, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China;

2. Key Laboratory of Time and Frequency Primary Standards, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710600, China;

3. School of Astronomy and Space Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 101048, China)

Abstract: Utilizing the mode filtering and power enhancement characteristics of the optical cavity, a scheme for generating dual-color, high repetition rate femtosecond laser based on an external frequency-doubled cavity was proposed. Firstly, the feasibility of this method was analyzed theoretically, showing that the mode filtering can be realized by using an optical cavity with large free spectrum range (FSR), thus increasing the repetition rate of the laser pulse; at the same time, the power enhancement factor in the cavity would decrease

收稿日期:2020-11-17;接受日期:2020-12-05

基金项目:国家自然科学基金资助项目(61875205;61801458;91836301;12033007);中国科学院前沿科学重点研 究资助项目(QYZDB-SSWSLH007);中国科学院"西部之光"人才培养计划"西部青年学者"B 类资助 项目(XAB2019B15;XAB2019B17);广东省重点研发资助项目(2018B030325001);中国科学院重点资 助项目(ZDRW-KT-2019-1-0103);中国科学院战略性先导科技专项C类资助项目(XDC07020200)

with the increasing of the repetition rate, leading to a limited frequency doubling efficiency. A six-mirror ring cavity with a FSR of 300 MHz along with a piece of 1 mm-thick BIBO crystal was used in our experiment. As the femtosecond pulse with a repetition rate of 75 MHz was injected into the cavity, the fundamental frequency and its second harmonic were generated and then separated in space. The side-mode suppression ratios of 300 MHz repetition rate signal of the fundamental frequency (815 nm) and its second harmonic (407.5 nm) reaches 30 dB and 20 dB, respectively. Furthermore, the frequency doubling efficiency, resonance spectrum and beam profile were measured and analyzed, which will lay the foundation for high repetition rate quantum optical frequency comb generation.

Key words: femtosecond laser; optical cavity; second harmonic generation; high repetition rate

0 引言

飞秒激光器是指电场强度分布在时域上的持续时间为飞秒量级的激光源,得益于其特殊的电场结构,飞秒激光在非线性光学、高能物理、精密光谱探测、光频测量等领域有着广泛而重要的应用^[1-3]。激光脉冲的重复频率(脉冲周期的倒数,以后简称为重频)是描述飞秒激光特性的一个重要参数,重频越大,表示激光的频率模式间隔越大,相应的脉冲时间间隔越小。在诸如高精度天文光谱学^[4]应用中,利用高重频的光频梳(相位锁定的飞秒激光器)来对高分辨率的天文光谱仪进行波长校准,相比传统方法可以极大地提升光谱仪的视向速度测量精度,从而为相关领域的发展开辟了新的方向。此外,在非线性光学采样^[6]系统中,也要求所用飞秒激光器具有高重频的特点,以获得高的数据刷新速率。为提高飞秒激光的重频,国内外研究者通常采用一个或者多个 Fabry-Perot (F-P)腔模式滤波的方法,通过滤除激光脉冲的一部分频率模式,实现激光脉冲重频的增大。譬如,1989年T.Sizer^[6]利用 F-P 腔模式滤波的方法,通过滤除激光脉冲的一部分频率模式,实现激光脉冲重频的增大。譬如,1989年T.Sizer^[6]利用 F-P 腔模式滤波的方法,私生提高至 984 MHz。2010年,F.Quinlan等人^[7]将光学频率梳的重复频率由 250 MHz 提高到了 12.5 GHz,边模抑制比大于 20 dB。2015年,侯磊等人^[8]利用两个级联的低精细度 F-P 腔进行滤波,将光学频率梳的重复频率由 250 MHz 提高到了 23.75 GHz。

倍频作为一种易于在实验上实现的二阶非线性效应,被广泛用于产生新的光频成分。自 P. A. Franken^[9] 在 1961 年首次提出光学二次谐波产生的概念以来,相关实验研究不断发展。为了提高倍频效率,基于 光学谐振腔的外腔倍频装置最初应用于连续激光的倍频,倍频效率超过 80%^[10-11]。随着飞秒激光技术的 发展,飞秒激光倍频的实验结果也随之被报道^[12-13]。需要注意的是,由于晶体中的色散引起超短脉冲的 走离效应^[14],将严重限制倍频效率,对于 100 fs 的激光脉冲倍频效率只有 20%^[15]。近年来,飞秒激光与 光学谐振腔相结合,更是成功产生了紫外波段的高次谐波^[16-17],极大地推动了高灵敏光谱领域的研究 进展。

结合时域上同步的倍频光和基频光脉冲,同步泵浦光学参量振荡器(SPOPO)可用于产生具有压缩 特性的量子光频梳¹¹⁹,在精密测量、量子信息和高精度时间同步等领域有着重要的应用前景^[19-21]。然而, 目前 SPOPO 系统所采用的倍频光和基频光脉冲的重频仍在百 MHz 以下,且时域上的同步通常采用额外 的光学延迟线,利用谐振腔实现百 MHz 以上的高重频基频光和倍频光同时产生的实验尚未见报道。

本文结合谐振腔的模式滤波及共振增强特性,进行了基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生的实验研究。首先从理论上简单介绍了利用大自由光谱区的谐振腔实现飞秒脉冲重频变换的原理,并通过理论研究表明:腔内功率放大倍数会随着重复频率的增大而减小,进而限制倍频效率的增加。在实验上采用自由光谱区为 300 MHz 的六镜环形倍频腔及 1 mm 厚的 BIBO 倍频晶体,输入重复频率为 75 MHz 的飞秒脉冲,实现了中心波长 815 nm 的基频光和中心波长 407.5 nm 的倍频光飞秒脉冲输出,其重复频率均

为 300 MHz,重频信号的边模抑制比分别达到 30 dB 和 20 dB。本文还进一步对实验产生的双色高重频 飞秒激光的倍频效率、共振光谱、光束质量等特性进行了测量分析。

基本原理

为了实现飞秒脉冲激光重频的增加,通常可以采用将激光脉冲序列输入一个基于短谐振腔的滤波光路。以结构最简单的 F-P 腔为例,谐振腔输出电场 *E*_{out} 可表示为^[6]

$$E_{\rm out} = \frac{TE_{\rm in}}{1 - Re^{i\delta}} \,\,. \tag{1}$$

式(1)中, E_{in} 为输入脉冲电场,R和T分别为腔镜的反射率和透射率, δ 为腔内电场传输一周的相移, $\delta = \frac{4\pi n l}{\lambda}$ 。(2)

式(2)中, l为 F-P 腔的长度, n为空气折射率, 将式(2)代入式(1)可以看出, 输出激光电场的模式间隔为 $\frac{c}{2nl}$, c为真空中的光速。因此, 可通过设定谐振腔的长度, 使其自由光谱区(FSR)为输入激光脉冲重频(f_r)的m($m=1,2,3,\cdots$)倍, 如图 1 所示, 只有与腔模重合的激光模式才能在腔内共振(图中以m=3示例)。因此采用谐振腔可以对激光模式进行滤波,从而实现重频增大m倍的效果。



图 1 谐振腔模式滤波原理示意图

除了模式滤波之外,谐振腔的功率增强特性也广泛应用于非线性光学实验中。为实现高重频的倍频光 和基频光同时输出,本实验设计搭建了一个对基频光单共振的六镜环形倍频腔,其输入、输出耦合镜的反 射率分别为 R₁, R₂,其余 4 个高反镜总的反射率设为 R₆,倍频晶体两个端面的透过率均为 t₁。假设该环 形腔的自由光谱区为输入激光脉冲重频的 m 倍、在不考虑非线性效应的条件下,由阻抗匹配条件^[22]可得:

$$P_{\rm c}(1 - \sqrt{(R_1 R_2 R_c t_1^2)^m})^2 = P_{\rm in}(1 - R_1) \quad , \tag{3}$$

式(3)中, P_{in} 表示腔前入射光功率, P_{c} 是稳态条件下腔内循环光功率。考虑实验所用参数($R_{1} = R_{2} = 0.99$, $R_{c} = 0.999^{4}$, $t_{1} = 0.998$), 根据式(3)计算出腔内功率放大倍数(P_{c} / P_{in})与脉冲重频增大倍数 m之间的关系如图 2 所示:随着 m的增大, 腔内功率放大倍数逐步减小, 从而将限制倍频效率的增加。

此外,由于在倍频过程中基频光转换为倍频光,相当于给倍频晶体上引入了一个与光强相关的透过 率(1-_{γ_{SH}}P_e),这里_{γ_{SH}}代表倍频晶体的非线性转化系数。此透过率(1-_{γ_{SH}}P_e)随着腔内循环光功率_{Pe} 增大而减小,最终导致腔的精细度下降,进而降低腔内功率增强倍数。因此,对于输入、输出耦合镜及 腔内其他损耗均确定的倍频腔,其阻抗匹配条件依赖于输入光功率。下文第3节将结合实验数据进一步 分析输入光功率对倍频效率的影响。



图 2 腔内功率放大倍数 (P_c / P_{in}) 与脉冲重频增大倍数 (m) 之间的关系

2 实验装置

基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生实验装置如图 3 所示,所用钛宝石锁模激光器 (Femtolasers,Fusion)中心波长为815 nm,光谱带宽~7 nm,脉冲宽度~130 fs,重复频率75 MHz。钛 宝石锁模激光器输出的飞秒脉冲激光经过透镜组(图中未显示)进行模式匹配后进入六镜蝴蝶结型环形 倍频腔。基于第1节理论分析,为了实现对输入飞秒脉冲重复频率的提升,我们将该倍频腔的长度设置 为1 m,对应自由光谱区为300 MHz。为减小腔内色散对共振光谱带宽的影响,所用腔镜均为 Layertec 公司提供的低色散镀膜反射镜,其中输入、输出镜(IC & OC)对输入基频光的反射率为99%,其余腔 镜对基频光均具有高反射率(>99.9%)。两个凹面反射镜(R3 & R4,曲率半径 100 mm)对倍频光具有 较高的透过率(>95%)。将一块1 mm 厚的 BIBO 晶体放置于 R3 与 R4 之间,用以产生倍频光。共振的 基频光及产生的倍频光分别从 OC 和 R3 处输出,用于后续的测量分析。



注: Ti:Sa Laser 为钛宝石锁模激光器; IC 为输入耦合镜; OC 为输出耦合镜; R1&R2 为平面反射镜; R3&R4 为凹面反射镜,曲面半径 100 mm; BIBO 为倍频晶体; QWP 为四分之一波片; PBS 为偏振分束器; PD1&PD2 为光电探测器; PZT 为压电驱动器 图 3 基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产生实验装置简图

在本实验中,我们采用 H-C 稳频技术^[23]将激光频率稳定到倍频腔的共振频率上,相比于另一种常用 的 PDH 稳频技术^[24],H-C 稳频技术的优点在于不需要额外的激光相位调制器件。得益于腔内倍频晶体发 生二阶非线性效应时的偏振依赖特性,腔反射光表现为椭圆偏振态,且与腔内激光共振频率相关。腔反 射光经过一个四分之一波片(QWP)与偏振分束器(PBS)的组合后分离出两束正交偏振光,分别被两 个光电探测器(PD1&PD2)接收后转换成电压信号。通过旋转四分之一波片的角度,两个探测器得到的 电压差可形成一个过零点的误差信号。该误差信号经过比例-积分电路处理后反馈至钛宝石锁模激光器 腔内的压电驱动器(PZT)上,通过对激光器腔长的动态调整以维持共振状态,从而获得稳定的基频光 和倍频光输出。随后我们分别对倍频光的倍频效率、重频特性、光束质量等参数进行了测量分析,实验 结果将在后文中详细讨论。

3 结果与分析

根据第1节和第2节理论部分的分析可知, 倍频晶体的非线性转化效率是与输入光功率相关的。基 频光到倍频光的转化,相当于给腔内共振的基频光增加了一个与输入光强相关的非线性损耗。该损耗随 着输入光功率的增加而增加,最终导致腔的精细度下降,进而降低腔内功率增强倍数。因此,对于输入、 输出耦合镜及腔内其他损耗均确定的倍频腔,其最佳阻抗匹配条件依赖于输入光功率。我们在不同输入 基频光功率条件下(50~500 mW),测量了输出倍频光功率和倍频效率,结果分别如图4(a)和(b) 所示。从图4(a)中可以看到,增加输入光功率,倍频光功率随之近似线性增长;考虑输入光功率, 图4(b)显示倍频效率在输入光功率增加至100 mW 左右时达到最大值4.7%,随后继续增大输入光功 率,倍频效率呈现下降趋势。两张图测量数据(圆点)与理论曲线(实线)吻合均良好,说明了理论分 析的正确性。因此后续测量分析都是在输入光功率为100 mW 情况下进行的。



注:图中圆点是测量数据,实线表示理论曲线

图 4 倍频光功率和倍频效率随输入光功率变化情况

为了简化实验装置以及避免调制器件引入色散,我们采用无调制的 H-C 稳频技术将输入激光频率锁 定到倍频腔的共振频率上,获得了稳定的基频和倍频双色激光输出。光功率计记录输出基频光功率随时 间变化情况如图 5 所示。无间断锁定时长超过 3 000 s,光功率波动的均方根为 0.8%。锁定时长及功率 稳定性可通过优化倍频腔的物理结构以及增加隔振隔音装置来进一步改善。

随后我们从时域和频域两方面对基频光和倍频光的重频信号特性进行分析。首先对腔内共振的基频 光进行分析,从输出耦合镜 OC 出射的基频光经一个高速光电探测器(EOT,ET-2030A)探测后连接示 波器(Teledyne LeCroy, WaveSurfer3034),采集到的时域波形如图 6(a)中实线所示。从图 6(a)中 可以清楚地看到,光脉冲经过倍频腔作用以后的脉冲周期为 3.25 ns,相比于未经过该倍频腔作用的输入 脉冲(灰色阴影部分,周期为 13 ns)周期减小了 4 倍,相应的重频将增大 4 倍。采用同样的探测装置, 获得倍频光的时域波形如图 6(b)所示,倍频光与腔内共振的基频光具有相同的脉冲周期。比较图 6 (a)和(b)中脉冲波形,不同之处在于图 6(b)中相邻脉冲的幅度差异更大,主要原因是倍频过程 中非线性效应将基频光的强度差异放大了。为了进一步评估该倍频腔对脉冲重频的提升效果,通常采用 频域信号的边模抑制比(主模与边模功率之比)²⁵¹来对频率模式过滤效果进行定量分析。将上述高速光 电探测器输出信号接入频谱分析仪(Rohde & Schwarz,FSH4),得到的基频光和倍频光的重频信号频 谱分别如图 6(c)和(d)所示。基频光及倍频光中重复频率信号中 300 MHz 功率均高于其他频率成分, 基频光的边模抑制比达到 30 dB,而倍频光的边模抑制比为 20 dB,这一结果与时域波形也具有很好的 对应关系。由此可见本文中提出的基于外腔倍频的实验方案可实现重频提高 4 倍的双色飞秒激光产生。





最后我们对基频光和倍频光的光谱进行了测量,强度归一化的光谱如图7所示,半高全宽为7.2 nm 的输入飞秒脉冲在倍频腔内共振后,由于受到腔内色散(主要来源于倍频晶体)的影响,只有中心波长 附近部分光谱成分共振^[22],导致输出基频光光谱半高宽变窄为4.9 nm,相应产生的倍频光光谱半高宽为 1.4 nm。此外,我们使用光束质量分析仪对基频光和倍频光的光束空间轮廓进行了测量,结果如图7中 插图所示。得益于谐振腔的空间滤波效应^[26],经过倍频腔作用以后基频光的光束质量明显改善,椭圆度 由原来的 57%提升至 95%。而受限于倍频过程中在倍频晶体上的空间走离效应^[27],倍频光的光束轮廓则 呈现椭圆形,椭圆度为 83%。



图 7 基频光和倍频光的光谱及空间轮廓(插图)

4 总结

本文利用谐振腔的模式滤波及共振增强特性,实验上实现了基于外腔倍频的双色高重频飞秒激光产 生。在实验上采用腔长1m的六镜环形倍频腔及厚度为1mm的BIBO倍频晶体,输入重频为75MHz、 中心波长为815nm的飞秒脉冲,同时产生了重频均为300MHz的基频和倍频双色飞秒激光的输出,其 边模抑制比分别达到了30dB和20dB。实验中测量了300MHz倍频光输出功率与输入的75MHz基频光 功率间的关系,得到最佳倍频效率为4.7%,与理论分析吻合良好,这一结果表明,随着重复频率的增 大,谐振腔的模式滤波限制了腔内功率增加倍数,从而减弱了非线性效应。此外,本实验还分析了输出 的双色高重频飞秒激光的光谱和空间分布特性,实验结果表明基于外腔倍频产生的高重频飞秒激光具有 了更好的光束质量。因此,基于外腔倍频所产生的双色高重频飞秒激光,将有望在同步泵浦光参量振荡 器、泵浦探测等领域发挥重要作用。

参考文献:

- [1] CUNDIFF S T, YE J. Colloquium: femtosecond optical frequency combs[J]. Reviews of Modern Physics, 2003, 75(1): 325-342.
- [2] KRAUSZ F, FERMANN M E, BRABEC T, et al. Femtosecond solid-state lasers[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1992, 28(10): 2097-2122.
- [3] UDEM T, HOLZWARTH R, HÄNSCH T W. Optical frequency metrology[J]. Nature, 2002, 416(6877): 233-237.
- [4] MURPHY M T, UDEM T, HOLZWARTH R, et al. High-precision wavelength calibration of astronomical spectrographs with laser frequency combs[J]. Monthly Notices of the Royal Astronomical Society, 2007, 380(2): 839-847.
- [5] HANG H, WEI H, WU X, et al. Absolute distance measurement by dual-comb nonlinear asynchronous optical sampling[J]. Optics Express, 2014, 22(6): 6597-6604.
- [6] SIZER T. Increase in laser repetition rate by spectral selection[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1989, 25(1): 97-103.
- [7] QUINLAN F, YCAS G, OSTERMAN S, et al. A 12.5 GHz-spaced optical frequency comb spanning >400 nm for near-infrared

astronomical spectrograph calibration[J]. Review of Scientific Instruments, 2010, 81(6): 063105.

- [8] HOU L, HAN H N, WANG W, et al. A 23.75-GHz frequency comb with two low-finesse filtering cavities in series for high resolution spectroscopy[J]. Chinese Physics B, 2015, 24(2): 202-206.
- [9] FRANKEN P A, HILL A E, PETERS C W, et al. Generation of optical harmonics[J]. Physical Review Letters, 1961, 7(4): 118-119.
- [10] OU Z Y, PEREIRA S F, POLZIK E S, et al. 85% efficiency for cw frequency doubling from 1.08 to 0.54 microm[J]. Optics Letters, 1992, 17(9): 640-642.
- [11] PASCHOTTA R, KÜRZ P, HENKING R, et al. 82% efficient continuous-wave frequency doubling of 1.06 μm with a monolithic MgO: LiNbO3 resonator[J]. Optics Letters, 1994, 19(17): 1325-1327.
- [12] CHIEN C Y, KORN G, COE J S, et al. Highly efficient second-harmonic generation of ultraintense Nd: glass laser pulses[J]. Optics Letters, 1995, 20(4): 353.
- [13] KRYLOV V, REBANE A, KALINTSEV A G, et al. Second-harmonic generation of amplified femtosecond Ti: sapphire laser pulses[J]. Optics Letters, 1995, 20(2): 198-200.
- [14] 林晓宣, 陈黎明, 李玉同, 等. 秒激光倍频的实验研究[J]. 科技导报, 2007, 25(18): 17-20.
- [15] TAMAKI Y, OBARA M, MIDORIKAWA K. Second-harmonic generation from intense, 100-fs Ti: sapphire laser pulses in potassium dihydrogen phosphate, cesium lithium borate and β-barium metaborate[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2014, 37(9A): 4801-4805.
- [16] GOHLE C, UDEM T, HERRMANN M, et al. A frequency comb in the extreme ultraviolet[J]. Nature, 2005, 436(7048): 234-237.
- [17] JONES R J, MOLL K D, THORPE M J, et al. Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity[J]. Physical Review Letters, 2005, 94(19): 193201.
- [18] PINEL O, JIAN P, MEDEIROS DE ARAUJO R, et al. Generation and characterization of multimode quantum frequency combs[J]. Physical Review Letters, 2012, 108(8): 083601.
- [19] WANG P, CHEN M R, MENICUCCI N C, et al. Weaving quantum optical frequency combs into continuous-variable hypercubic cluster states[J]. Physical Review A, 2014, 90(3): 032325.
- [20] JIAN P, PINEL O, FABRE C, et al. Real-time displacement measurement immune from atmospheric parameters using optical frequency combs[J]. Optics Express, 2012, 20(24): 27133-27146.
- [21] LAMINE B, FABRE C, TREPS N. Quantum improvement of time transfer between remote clocks[J]. Physical Review Letters, 2008, 101(12): 123601.
- [22] ZHANG J W, HAN H N, HOU L, et al. Frequency doubled femtosecond Ti: sapphire laser with an assisted enhancement cavity[J]. Chinese Physics B, 2016, 25(1): 014201(1-4).
- [23] HANSCH T W, COUILLAUD B. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity[J]. Optics Communications, 1980, 35(3): 441-444.
- [24] DREVER R W P, HALL J L, KOWALSKI F V, et al. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator[J]. Applied Physics B, 1983, 31(2): 97-105.
- [25] NAKAJIMA Y, NISHIYAMA A, HARIKI T, et al. Repetition rate multiplication of fiber-based frequency comb with high side-mode suppression ratio[C]//Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics/Pacific Rim, Hong Kong: [s.n.], 2018: Th1c.3.
- [26] WILLKE B, UEHARA N, GUSTAFSON E K, et al. Spatial and temporal filtering of a 10-W Nd: YAG laser with a fabry-perot ring-cavity premode cleaner[J]. Optics Letters, 1998, 23(21): 1704-1706.
- [27] GEHR R J, KIMMEL M W, SMITH A V. Simultaneous spatial and temporal walk-off compensation in frequency-doubling femtosecond pulses in beta-BaB(2)O(4)[J]. Optics Letters, 1998, 23(16): 1298-1300.