

# 激光刻写三维全息图产生涡旋倍频的实验和理论研究

陈鑫<sup>1</sup>, 尹恒<sup>1</sup>, 刘山<sup>2</sup>, 赵璧君<sup>2\*</sup>, 王军利<sup>1</sup>, 盛艳<sup>2\*</sup>, 魏志义<sup>3</sup>,  
Krolikowski Wieslaw<sup>2,4</sup>

- (1. 西安电子科技大学物理与光电工程学院, 陕西西安 710071;
2. 澳大利亚国立大学物理研究院激光技术中心, 堪培拉 2601;
3. 中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190;
4. 德克萨斯A&M大学卡塔尔分校科学项目组, 多哈 23874)

**摘要:** 涡旋光通常需借助外部光学元件或结构将高斯光束整形来产生。激光引发的光致折变结构可以将光束整形功能直写到材料内部, 具有便于集成和稳定性好等优点, 但这种线性衍射通常无法获得高效的倍频涡旋输出。为解决该问题, 首先实验研究了铌酸锂中激光直写参量对光致折变结构分辨率和最大深度的影响, 并刻写三维全息图将高斯基频光转换为十字形涡旋倍频; 之后理论证明了利用基频的布拉格衍射, 可在1.074~3.716 $\mu\text{m}$ 范围产生相位匹配的涡旋倍频输出。

**关键词:** 体相位全息图; 飞秒激光直写; 光束整形; 频率变换  
**中图分类号:** O437; O436.1 **文献标识码:** A

## Experimental and theoretical research on second harmonic optical vortex generated by laser inscribed 3D holograms

CHEN Xin<sup>1</sup>, YIN Heng<sup>1</sup>, LIU Shan<sup>2</sup>, ZHAO Bi-Jun<sup>2\*</sup>, WANG Jun-Li<sup>1</sup>, SHENG Yan<sup>2\*</sup>, WEI Zhi-Yi<sup>3</sup>,  
Krolikowski Wieslaw<sup>2,4</sup>

- (1. School of physics and optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China;
2. Laser Physics Centre, Research School of Physics, Australian National University, Canberra, ACT 2601, Australia;
3. Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;
4. Science Program, Texas A&M University at Qatar, Doha 23874, Qatar)

**Abstract:** Optical vortex is normally generated via a beam shaping process by irradiating a Gaussian beam through an external optical element or structure. Laser induced photorefractive structures can direct endow beam shaping functions inside materials, which can be stable and easy for the integration of devices. However, this is a method based on linear diffraction and normally cannot obtain efficient second harmonic optical vortex. To solve this problem, firstly, the effects of laser writing parameters on the resolution and maximal depth of photorefractive structures were experimentally investigated in lithium niobate. As a proof of concept, cross-shaped second harmonic vortex beams were obtained by illuminating a fundamental Gaussian beam through a 3D fork hologram. Then it was theoretically demonstrated that phase-matched second harmonic vortex beams can be generated by utilizing the Bragg diffraction of fundamental beam in the wavelength range between 1.074~3.716  $\mu\text{m}$ .

收稿日期: 2020-04-11, 修回日期: 2020-12-11

Received date: 2020-04-11, Revised date: 2020-12-11

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金(11904273); 中央高校基本科研业务费项目(10251180017)

Foundation items: Supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (11904273); the Fundamental Research Funds for the Central Universities(10251180017)

作者简介(Biography): 陈鑫(1988-), 男, 湖北武汉人, 西安电子科技大学激光技术系副教授, 博士, 主要研究领域为激光微纳加工、非线性光学。E-mail: xin.chen@xidian.edu.cn

\*通讯作者(Corresponding author): E-mail: bijunzhao@hotmail.com, yan.sheng@anu.edu.au

**Key words:** volume phase hologram, femtosecond laser direct writing, beam shaping, frequency conversion  
**PACS:** 42. 55. Px, 78. 55. Cr, 78. 67. De, 68. 65. Fg

## 引言

具有螺旋相位分布的光波,其坡印廷矢量包含一个方位角分量,导致能流环绕中心的奇点从而形成环状的强度分布,因此也被称为光涡旋。涡旋光束的电场强度表达式中含有相位因子 $e^{il\phi}$ ,每个光子携带 $l\hbar$ 的轨道角动量(OAM),其中 $l$ 是拓扑电荷数, $\phi$ 是角坐标, $\hbar$ 是约化普朗克常数。涡旋光因其在光学角动量和动力学方面的独特性能而被广泛应用在高精度粒子操控,高速宽带频光通信,激光微纳加工和超分辨率显微镜等领域<sup>[1-5]</sup>。

涡旋光束的产生一般是通过外部光学元件中的线性衍射来实现的,例如相位板和空间光调制器等。近年来,通过非线性光学频率变换过程,在新的频率波产生和操控涡旋光受到了广泛关注。这通常是利用电场极化法(electric field poling, 简记为 EFP)或激光直写铁电晶体技术<sup>[6-9]</sup>制备的非线性光子晶体来实现的<sup>[10-14]</sup>。这些晶体的二阶非线性系数 $\chi^{(2)}$ 是空间调制的,其分布对应于选定的计算机生成全息图(computer generated hologram, 简记为 CGH),因而自带拓扑电荷,再通过非线性频率变换过程获得相应拓扑电荷的倍频信号。常用的非线性材料如铌酸锂等,其自发极化方向沿 $z$ 轴朝向,EFP需要沿着该方向施加电压以获得 $\chi^{(2)}$ 的空间调制。因此除非特殊设计电极,该方法通常只能在 $z$ 切铌酸锂中应用,并且极化后多为一维或者二维结构。在一些应用场景中非 $z$ 切的铌酸锂晶体更为有利<sup>[15, 16]</sup>。而飞秒激光直写技术虽然原则上可在非 $z$ 切铌酸锂晶体中实现 $\chi^{(2)}$ 的空间调制,但目前还未见激光直写的 $x$ 或 $y$ 切铌酸锂用于非线性光波整形的报道。另外激光调制 $\chi^{(2)}$ ,特别是直接反转铁电畴,背后的物理机理比较复杂,对直写参量的调控难度也比较大。

与利用非线性系数的空间调制不同,涡旋光的非线性产生也可以通过铌酸锂等光致折变材料中的折射率变化来实现。这种方法的优点是,可以利用铌酸锂传输窗口宽,且其光折变效应不受晶向影响的特点,在不同切向的晶体中利用激光直写灵活地制备光致折变 CGH,甚至通过直写三维 CGH 变来实现更为复杂的光束整形和调控功能。尽管在技术实现上相比激光调制 $\chi^{(2)}$ 更为容易,但是基于光折

变的非线性涡旋光输出存在转换效率低的问题。具体来说,该过程首先是对入射基频光波进行整形,获得线性衍射的涡旋光,然后再进行相应的频率变换过程。由于光致折变 CGH 无法像周期调制的 $\chi^{(2)}$ 结构那样来弥补相位失配,因此获得的非线性涡旋输出通常效率低下。针对以上问题,本文在 $x$ 和 $z$ 切铌酸锂中开展了光致折变结构的激光直写工作,并将制备的三维 CGH 用于涡旋倍频输出的实验和理论研究。为证明三维光折变结构的光束整形功能,我们利用刻写的一个三维叉子形结构,将一束高斯基频光转换为了十字形分布的涡旋倍频输出。实验结果证明该激光刻写法为 CGH 在光致折变材料中的应用提供了更多的可能性和灵活性。同时,为了提高基于光折变结构非线性光波整形的效率,提出了可借助基频光的布拉格衍射来实现频率转换过程的相位匹配方案。

## 1 实验过程

实验光路图如图 1 所示。激光直写所用光源为光谱物理公司的 Mira-900,产生波长 800 nm,脉宽 180 fs 和重复频率 76 MHz 的脉冲激光。输出激光通过半波片和偏振片的组合来调整直写功率。激光通过数值孔径 0.65 的物镜聚焦在 $x$ 或者 $z$ 切的铌酸锂晶体上,后者被固定在一个可三维移动的平台。通过控制光快门和三维台,可以在晶体内部刻写任意图样的光致折变结构。整个实验装置还可通过蓝光 LED 照明和 CCD 成像来提供实时监控。



图 1 实验光路示意图,铌酸锂晶体(LN)固定在三维可移动平台上(图中未画出)

Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup. Lithium niobate crystal is mounted on a 3D translational stage (not shown in the figure)

刻写结构完成后,可用共聚焦显微镜(蔡司 LSM780 UV-NLO)进行成像。该显微镜配备波长范围 690~1 040 nm 的亚百飞秒脉冲激光。为避免成像过程对材料产生不必要的影响,我们选用波长较长(900 nm)的激光进行扫描。成像光束聚焦在晶体内部进行三维扫描即可获得刻写结构的三维无损成像。该显微镜的侧向和轴向分辨率分别约为  $0.5 \mu\text{m}$  和  $3 \mu\text{m}$ 。

## 2 结果与讨论

### 2.1 激光直写参量对光致折变结构的影响

实验发现当直写功率足够高的时候,可以在晶体内部产生坏点。当高能量的超短脉冲激光被紧紧聚焦于透明材料内部时,产生的高度局域化的等离子体会形成微型爆炸从而导致晶体内部出现坏点<sup>[17]</sup>。产生坏点的激光损伤阈值随着聚焦深度的增加近似线性增大,并且该规律在  $x$  和  $z$  切铌酸锂中都得到了验证。而  $x$  切铌酸锂晶体在相同深度的损伤阈值普遍低于  $z$  切晶体,原因后面会详述。在直写光致折变结构之前,会测定不同深度处的光损伤功率,之后在某个深度处刻写时,将激光功率控制在损伤阈值之下,即可在不同深度处刻写一系列的光致折变结构。另外在直写结构周围会故意刻写一组坏点来组成标记图案,方便后期成像和光学实验中对光致折变结构进行定位和区分。图 2 展示的是一些典型光致折变结构的共聚焦显微镜成像图。在  $x$  切铌酸锂晶体中,用直写激光的最大功率(700 mW)可以刻写的最大深度约为  $270 \mu\text{m}$ 。现有实验条件下,相邻刻线间的最小间距为  $0.8 \mu\text{m}$ ,如图 3 所示。

刻写的深度与分辨率与焦点处的光强和光束质量密切相关,主要受以下几个因素影响:首先是界面引入的球面像差。球面像差是一个普遍存在的现象,不论所用晶体是各向同性还是各向异性。铌酸锂与空气之间巨大的折射率差值会引入球面像差,在紧聚焦的情况下会导致焦点处的轴向畸变<sup>[18]</sup>。球面像差通常可以通过对特殊设计的聚焦系统或者空间光调制器来弥补<sup>[19]</sup>。本实验并未对球面像差进行矫正。第二个影响因素是焦点分散现象,这主要发生在激光紧紧聚焦于单轴晶体中的情况<sup>[20]</sup>。当线偏振的高斯光束沿着铌酸锂晶体光轴方向汇聚时(入射  $z$  切晶体),不论偏振方向如何都会产生两个聚焦光斑。两焦点间的间距随着聚焦深度增加会增大。而当光束沿着与光轴垂直的方

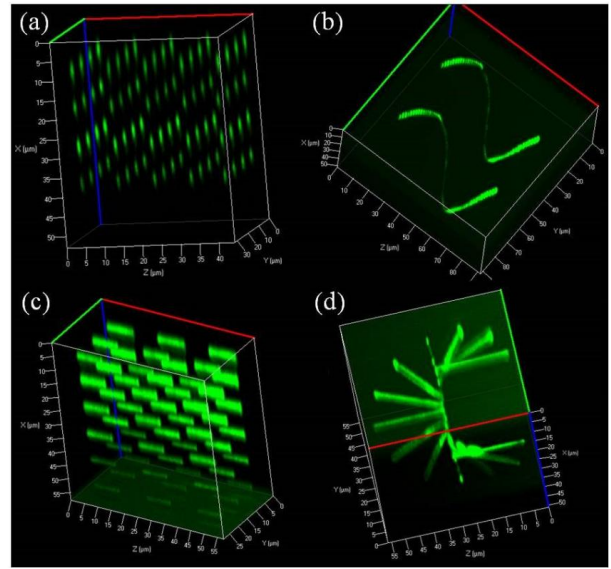


图 2 激光直写的光致折变结构的共聚焦显微镜成像图。(a) 三维点阵结构,(b)螺旋结构,(c)三维片状结构,(d)螺旋阶梯结构

Fig. 2 Confocal transmission images of the laser inscribed photorefractive structures. (a) 3D lattice structure, (b) helix structure, (c) 3D flake structures and (d) spiral staircase structure

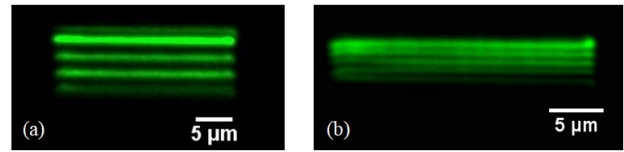


图 3 不同空间间隔的一维周期刻线。(a)间隔  $2 \mu\text{m}$ , (b)间隔  $0.8 \mu\text{m}$

Fig. 3 Laser inscribed lines with period of (a) 2 and (b)  $0.8 \mu\text{m}$

向聚焦的时候(入射  $x$  切晶体),偏振会影响焦点分散现象<sup>[21]</sup>。在两种特定的情况下,即聚焦光束偏振垂直和平行于光轴时,分别会产生一个和两个焦点;其他情况下均会产生三个焦点。焦点分散现象不仅会降低焦点处的峰值功率,还会影响光强分布,从而导致直写深度减小和直写分辨率降低。由于焦点分散现象在  $z$  切铌酸锂中无法通过选择入射偏振来消除,因此其直写深度会小于  $x$  切晶体。实验中我们采用垂直偏振的直写光束在  $x$  切铌酸锂中刻写,以保证光致折变结构的质量。

### 2.2 激光直写三维 CGH 产生涡旋倍频的光学实验

为证明光致折变结构的光束整形功能,我们在  $x$  切铌酸锂晶体中刻写了叉子形状的 CGH,用于将



高斯光束转换为涡旋光束。一个拓扑电荷数为  $l_c$ ，周期为  $\Lambda$  的叉子结构可以用以下方程描述：

$$\chi = d \text{sign}[\cos[2\pi f(r, \varphi) + l_c \varphi] + c] \quad , \quad (1)$$

其中  $\mathbf{r} = x\mathbf{x} + z\mathbf{z}$ ， $\varphi = \arctan(z/x)$  是方位角， $f(r, \varphi) = |r|\cos\varphi/\Lambda$ ， $d$  和  $c$  是常数。实验中  $x$  切晶体的光轴是竖直朝向，直写光束偏振是水平朝向。整个三维 CGH 由两层不同拓扑电荷数的叉子结构组成，分别用相应的直写功率在不同深度刻写。为避免刻写结构对光束质量产生影响，首先在深处（深度  $125 \mu\text{m}$ ）刻写第一层（拓扑电荷数 2，周期  $5 \mu\text{m}$ ）叉子结构，刻写功率为  $530 \text{ mW}$ 。该层叉子的朝向在晶体光轴逆时针  $45^\circ$  方向。之后再使用  $465 \text{ mW}$  在第一层上方（深度  $88 \mu\text{m}$ ）刻写第二层叉子结构（拓扑电荷数 1，周期  $5 \mu\text{m}$ ），其朝向沿着光轴顺时针  $45^\circ$  方向。整个三维 CGH 如图 4(a) 所示，由相互垂直的两层叉子结构组成，单层细节图详见图 4(b) 和 (c)。

三维 CGH 制备完成后，一束  $815 \text{ nm}$  的基频光通过焦距为  $15 \text{ cm}$  的透镜聚焦到晶体内，产生的倍频输出如图 5(b) 所示，由两组十字交叉分布的涡旋

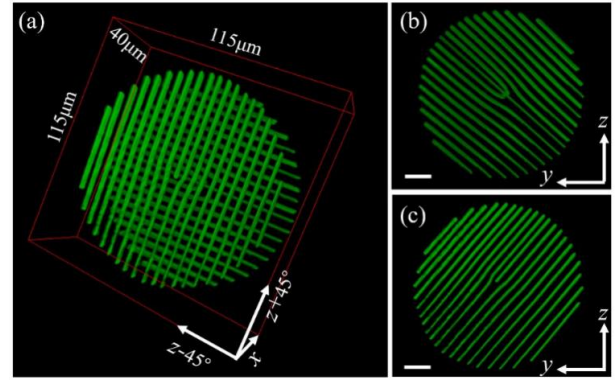


图 4 (a) 三维叉子结构的共聚焦显微镜图，(b) 拓扑电荷数为 2 的其中一层结构，(c) 拓扑电荷数为 1 的另一层结构，图 (b) 和 (c) 中比例尺为  $15 \mu\text{m}$ ，叉子结构的单层厚度约  $5 \mu\text{m}$

Fig. 4 Confocal transmission image of (a) the 3D hologram, (b) the fork with  $l_c=2$  and (c) the fork with  $l_c=1$ . The scale bar in (b) and (c) is  $15 \mu\text{m}$ . The thickness of a fork structure in  $x$  direction is about  $5 \mu\text{m}$

倍频组成。涡旋内径更大的一组由拓扑电荷数为 2 的叉子结构产生。随着衍射级数增加，两组倍频的

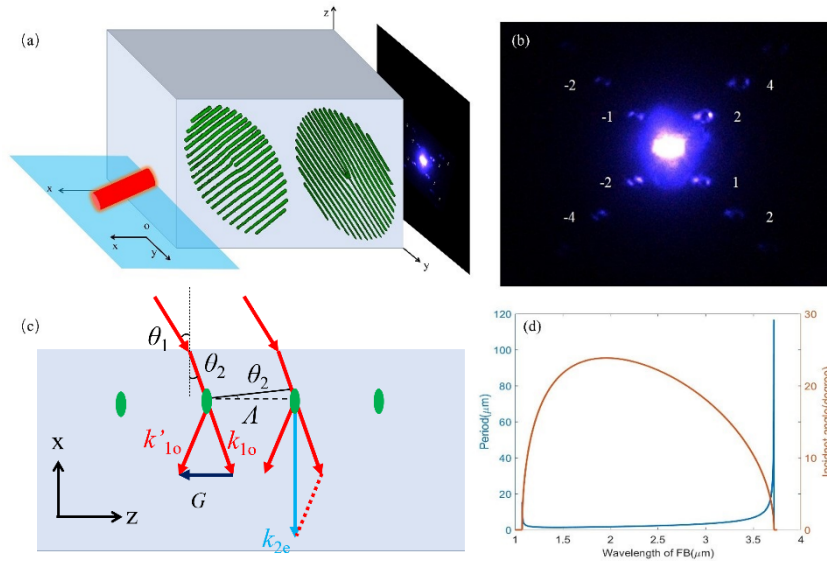


图 5 (a) 利用布拉格衍射产生非共线相位匹配的 oo-e 倍频输出示意图，(b) 该三维 CGH 产生的典型十字形涡旋倍频图样，相应的拓扑电荷数已用数字标出，(c) 左侧一组为基频光在 CGH 处的布拉格衍射示意图，右侧一组为利用布拉格衍射形成的相位匹配图，其中  $\mathbf{k}_{1o}$  为寻常偏振基频光的波矢， $\mathbf{k}'_{1o}$  为一阶衍射基频光波矢， $\mathbf{G}$  为 CGH 提供的倒格矢， $\mathbf{k}_{2e}$  为相位匹配的非寻常偏振的倍频光波矢， $A$  为结构沿  $z$  轴的周期，(d) 不同波长基频光产生相位匹配非共线倍频输出所需的结构周期（蓝线）和入射角度（红线）

Fig. 5 (a) Noncollinear phase matching scheme by utilizing efficient Bragg diffractions in an oo-e process, (b) Typical cross-shaped vortex SH beams generated by the 3D hologram. The topological charge of different orders is marked with corresponding number, (c) Bragg diffraction diagram of fundamental beam (FB) at CGH and the Phase-matching diagram, where  $\mathbf{k}_{1o}$  is the wave factor of ordinarily polarized FB,  $\mathbf{k}'_{1o}$  is the wave factor of Bragg diffracted FB,  $\mathbf{G}$  is the reciprocal lattice vector provided by the periodic CGH,  $\mathbf{k}_{2e}$  is the wave factor of extordinally polarized second harmonic (SH), and  $A$  is the period of the structure along  $z$ . (d) Period (blue curve) and incident angle (red curve) needed for noncollinear phase matching at different FB wavelengths

涡旋内径均随之增大,这对应于增大的拓扑电荷数。

通常没有相位匹配的倍频信号是比较弱的。这里我们从理论上证明,可以利用基频光的布拉格衍射,通过一个 oo-e 的倍频过程,实现相位匹配的非共线倍频输出。该方法的光路和相位匹配图详见图 5(a)和(c)。一束寻常光从  $xoy$  平面以角度  $\theta_1$  入射到晶体内部,当晶体内部的角度正好为布拉格衍射角  $\theta_2$  时,CGH 可以产生高效的衍射。需要指出的是,由于激光直写造成的折射率数值变化在  $10^{-3}$  量级,因此这里忽略了 CGH 对基频光折射的影响。根据铌酸锂的 Sellmeier 方程可知<sup>[22]</sup>,当基频光波长在 1074 ~ 3718 nm 之间的时候满足  $n_{1o} > n_{2e}$ ,此时零阶和一阶基频衍射以及非寻常偏振的倍频可以组成相位匹配三角形。将基频光沿着  $xoy$  平面入射可以保证基频光在两层叉子结构的入射角相等,从而都满足该非共线相位匹配条件。 $\theta_2$  满足布拉格衍射,可以写为  $\sin\theta_2 = \lambda_i / (2\Lambda n_{1o})$ 。而根据相位匹配三角形可以得出  $\cos\theta_2 = k_{2e} / 2k_{1o} = n_{2e} / n_{1o}$ 。结合上面两个式子可以得出:

$$\Lambda = \lambda_i / \{2n_{1o}[1 - (n_{2e}/n_{1o})^2]^{1/2}\}, \quad (2)$$

另外空气中的入射角根据折射定律可以推算表示为  $\sin\theta_1 = \lambda_i / (2\Lambda)$ 。图 5(d)给出了不同波长基频光入射时,为满足相位匹配所需的 CGH 周期以及入射角  $\theta_1$  的曲线图。该计算结果为光折变 CGH 产生倍频涡旋输出提供了一个实现相位匹配的传输方案,可以在一个很宽的基频光范围内通过设计结构的周期和入射角度来获得有效的倍频涡旋光。

### 3 结论

研究了利用激光直写技术在铌酸锂晶体中制备 CGH 用于非线性光束整形。由于是基于光致折变效应,因此该方法不受晶体切向限制,可以在非  $z$  切铌酸锂晶体中制备各种各样的三维 CGH。实验研究了激光功率、偏振和晶体朝向对刻写结构深度和精度的影响。通过选择偏振垂直光轴方向的激光在  $x$  切铌酸锂内部刻写,可以在不借助外部光学元件的条件下消除焦点分散现象。实验制备的三维叉子结构可以将入射的高斯基频光束转换为十字形分布的涡旋倍频输出。为了弥补相位失配,可以利用布拉格衍射的基频光来实现非共线的相位匹配倍频输出。给出了不同基频光波长下所需的入射角度以及 CGH 周期的理论计算结果。激光直写的方法灵活且精度高,刻写的内部光致折变结构

节省空间且不易受环境影响,从而可用来实现功能复杂和输出稳定的光束整形。

### References

- [1] Grier D G. A revolution in optical manipulation [J]. *Nature*, 2003, **424**(6950): 810-816.
- [2] Huang L, Salter P, Payne F, *et al.* Aberration correction for direct laser written waveguides in a transverse geometry [J]. *Optics Express*, 2016, **24**(10): 10565-10574.
- [3] Mair A, Vaziri A, Weihs G, *et al.* Entanglement of the orbital angular momentum states of photons [J]. *Nature*, 2001, **412**(6844): 313-316.
- [4] Orlov S S, Phillips W, Bjornson E, *et al.* High-transfer-rate high-capacity holographic disk data-storage system [J]. *Applied Optics*, 2004, **43**(25): 4902-4914.
- [5] Wang J, Yang J-Y, Fazal I M, *et al.* Terabit free-space data transmission employing orbital angular momentum multiplexing [J]. *Nature Photonics*, 2012, **6**(7): 488.
- [6] Liu S, Switkowski K, Xu C, *et al.* Nonlinear wavefront shaping with optically induced three-dimensional nonlinear photonic crystals [J]. *Nature Communications*, 2019, **10**(1): 1-7.
- [7] Wei D, Wang C, Wang H, *et al.* Experimental demonstration of a three-dimensional lithium niobate nonlinear photonic crystal [J]. *Nature Photonics*, 2018, **12**(10): 596-600.
- [8] Wei D, Wang C, Xu X, *et al.* Efficient nonlinear beam shaping in three-dimensional lithium niobate nonlinear photonic crystals [J]. *Nature Communications*, 2019, **10**(1): 1-7.
- [9] Xu T, Switkowski K, Chen X, *et al.* Three-dimensional nonlinear photonic crystal in ferroelectric barium calcium titanate [J]. *Nature Photonics*, 2018, **12**(10): 591-595.
- [10] Wei D, Guo J, Fang X, *et al.* Multiple generations of high-order orbital angular momentum modes through cascaded third-harmonic generation in a 2D nonlinear photonic crystal [J]. *Optics Express*, 2017, **25**(10): 11556-11563.
- [11] Bloch N V, Shemer K, Shapira A, *et al.* Twisting light by nonlinear photonic crystals [J]. *Physical Review Letters*, 2012, **108**(23): 233902.
- [12] Shemer K, Voloch-Bloch N, Shapira A, *et al.* Azimuthal and radial shaping of vortex beams generated in twisted nonlinear photonic crystals [J]. *Optics Letters*, 2013, **38**(24): 5470-5473.
- [13] Ellenbogen T, Voloch-Bloch N, Ganany-Padowicz A, *et al.* Nonlinear generation and manipulation of Airy beams [J]. *Nature Photonics*, 2009, **3**(7): 395-398.
- [14] Shapira A, Juwiler I, Arie A. Nonlinear computer-generated holograms [J]. *Optics letters*, 2011, **36**(15): 3015-3017.
- [15] Mizuuchi K, Yamamoto K, Kato M. Harmonic blue light generation in X-cut MgO: LiNbO/sub 3/waveguide [J]. *Electronics Letters*, 1997, **33**(9): 806-807.
- [16] Chang L, Li Y, Volet N, *et al.* Thin film wavelength converters for photonic integrated circuits [J]. *Optica*, 2016, **3**(5): 531-535.
- [17] Glezer E, Milosavljevic M, Huang L, *et al.* Three-dimen-

- sional optical storage inside transparent materials [J]. *Optics Letters*, 1996, **21**(24): 2023–2025.
- [18] Gu M. *Advanced optical imaging theory*: Springer Science & Business Media, 2000.
- [19] Cumming B P, Jesacher A, Booth M J, *et al.* Adaptive aberration compensation for three-dimensional micro-fabrication of photonic crystals in lithium niobate [J]. *Optics Express*, 2011, **19**(10): 9419–9425.
- [20] Zhou G, Jesacher A, Booth M, *et al.* Axial birefringence induced focus splitting in lithium niobate [J]. *Optics Express*, 2009, **17**(20): 17970–17975.
- [21] Karpinski P, Shvedov V, Krolikowski W, *et al.* Laser-writing inside uniaxially birefringent crystals: fine morphology of ultrashort pulse-induced changes in lithium niobate [J]. *Optics Express*, 2016, **24**(7): 7456–7476.
- [22] Zelmon D E, Small D L, Jundt D. Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol.% magnesium oxide - doped lithium niobate [J]. *JOSA B*, 1997, **14**(12): 3319–3322.