文章编号: 0258-7025(2008)Supplement-0134-05

## 高非线性液芯光子晶体光纤中超连续谱的产生

张 会1 郭 澎1 常胜江1 袁景和2

(<sup>1</sup> 南开大学现代光学研究所光电信息科学教育部重点实验室, 天津 300071)

<sup>2</sup>烟台大学光电信息科学与技术学院,山东烟台 264005

摘要 提出了一种实现高非线性光子晶体光纤(PCF)的新方法,即在空芯光子晶体光纤(HC-PCF)的纤芯空气孔 中填充高折射率、高非线性折射率的液态物质三氯甲烷、甲苯、二硫化碳等。利用全矢量有限元方法分析了这种液 芯光子晶体光纤的模式分布及色散性质,分析得出其零色散波长可在 800 nm 左右调节,因此可使中心波长 800 nm 的钛宝石飞秒脉冲激光在这种光子晶体光纤的反常色散区传输,有利于超连续谱的产生。而且由于填充后光子晶 体光纤具有较高的非线性系数,较小功率的脉冲激光就可在几毫米长的这种液芯光子晶体光纤中得到频谱范围大 于 1000 nm 的超连续谱。

关键词 非线性光学;高非线性光子晶体光纤;超连续谱;色散 中图分类号 O437;TN252 **文献标识码** A

### Supercontinuum Spectra Generation in the Highly Nonlinear Liquid-Core Photonic-Crystal Fiber

Zhang Hui<sup>1</sup> Guo Peng<sup>1</sup> Chang Shengjiang<sup>1</sup> Yuan Jinghe<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071, China

<sup>2</sup> Institute of Science and Technology for Opto-Electron Information, Yantai University, Yantai, Shandong 264005, China

**Abstract** A novel method to realize a highly nonlinear photonic crystal fiber (PCF) is reported. In this method, the core of the hollow core-PCF (HC-PCF) is filled with highly nonlinear liquids, such as carbon disulfide, chloroform and methylbenzene. The transmitting characteristics, fundamental mode distribution and dispersion features of the liquid-filled PCFs are studied by using the full-vector finite element method. Numerical results indicate that the zero-dispersion wavelength of the liquid-filled PCF can be tuned around 800 nm. And the propagation of femtosecond pulses laser with central wavelength at 800 nm through the liquid-filled PCF in its anomalous dispersion regime is numerically simulated. As the liquid-filled PCF demonstrates highly nonlinear coefficient, the liquid-filled PCF is capable to generate dramatically broadened supercontinuum about 1000 nm through several micrometers distance.

Key words nonlinear optics; highly nonlinear photonic crystal fiber; supercontinuum spectra; dispersion

1 引 言

光子晶体光纤(PCF)中超连续谱的产生一直是 近年的研究热点,超连续谱也已经在很多领域中得 到了广泛的应用,如度量衡<sup>[1]</sup>,光学相干层析成 像<sup>[2]</sup>,相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)共焦显微 术<sup>[3]</sup>等领域。对于在光子晶体光纤反常色散区传输 的脉冲,其产生连续谱的主要机制为自相位调制、自 变陡效应、脉冲内拉曼散射等非线性效应以及光子 晶体光纤的群速度色散、高阶色散等<sup>[4-6]</sup>。光子晶 体光纤的非线性性质是超连续谱产生的一个重要因 素,因此高非线性光子晶体光纤的研究对于超连续 谱的获得有十分重要的意义。获得高非线性光子晶 体光纤一般通过两种途径,一种是通过减小光子晶 体光纤的有效模场面积来增大光子晶体光纤的非线

**基金项目:**国家 973 计划(2007CB310403)、天津市自然科学基金重点项目(07JCZDJC05500)和国家自然科学基金(60772105)资助课题。

作者简介:张 会(1981-),女,山东人,博士研究生,主要从事光电信息处理方面的研究。

E-mail: zhanghuizxh@126.com

**导师简介:**常胜江(1965-),男,辽宁人,教授,主要从事光学/数字图像的获取与处理、THz 波产生技术及应用等方面的 研究。E-mail: sjchang@nankai.edu.cn

性系数,另一种方法是改变纤芯材料的非线性性质。 对于熔融石英芯的光子晶体光纤,采用增加包层空 气填充率的方法可达到几个微米的小模场面积。但 是模场面积的减小会给光的耦合带来很大困难。因 此非熔融石英芯高非线性光子晶体光纤的研究变得 活跃。目前用高非线性玻璃 SF6 玻璃<sup>[7]</sup>和 TF10<sup>[8]</sup> 玻璃制备的高非线性光子晶体光纤已经在理论和实 验中实现。由于这些材料具有比熔融石英大一个数 量级的非线性折射率,因此在非常短的传输距离内 就可以产生超连续谱。

高非线性折射率的液体二硫化碳也被用来填充 普通空芯光纤以便实现光谱展宽<sup>[9]</sup>,但得到的光谱 不是超连续谱而是一些孤立的峰。主要是由于超连 续谱产生的另一个关键条件没有满足,即入射脉冲 激光波长在光纤的反常色散区且中心波长接近光纤 的零色散波长这一条件没有得到满足。普通光纤的 色散主要由石英的材料色散特性决定,通常只有在 1300 nm 以上的区域才出现反常色散。但是对于光 子晶体光纤来说,它的色散、偏振及传输特性可通过 改变光子晶体光纤结构或者把各种液体比如乙 醇<sup>[10]</sup>、聚合物<sup>[11]</sup>、液晶<sup>[12]</sup>等完全或选择性地填充到 光子晶体光纤空气孔中来调节。

本文提出将非线性折射率比熔融石英大两个数 量级的三氯甲烷、甲苯、二硫化碳等高非线性液体填 充到空芯光子晶体光纤(HC-PCF)的空芯空气中来 实现高非线性光子晶体光纤,从而得到较理想的超 连续谱。采用全矢量有限元法分析了液芯高非线性 光子晶体光纤的基模模式特点及其色散特性,并且 在考虑高阶色散及高阶非线性效应的情况下,分析 了中心波长为 800 nm 的钛宝石飞秒脉冲激光在填 充了三氯甲烷的光子晶体光纤反常色散区零色散波 长附近传输时产生的超连续谱特点。

#### 2 液芯光子晶体光纤的模式及色散特性

激光在空芯光子晶体光纤中是借助于光子禁带 效应传播的。空芯光子晶体光纤利用包层中高度有 序排列的空气孔形成光子带隙(PBG),纤芯则是在 光子带隙中引入缺陷,使光仅能在缺陷态中传播。 空芯光子晶体光纤剖面图如图1所示。本文模拟的 PCF空气孔直径(2r)为1.3 µm,包层空气孔间距 (A)为1.5 µm,中芯空气孔直径(2a)为1.7 µm。主要 在理论上分析了当中心空气孔中填充高折射率、高非 线性折射率的液态物质后,中心波长 800 nm 的脉冲 激光在这种液芯光子晶体光纤中的传输特点。



图 1 空芯光子晶体光纤端面图

Fig. 1 Cross section of HC-PCF

#### 2.1 液芯光子晶体光纤的模式特点

二硫化碳(CS<sub>2</sub>)、三氯甲烷(CHCL<sub>3</sub>)和甲苯 (C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>)的折射率可表示为<sup>[13]</sup>(其中λ单位为 nm)

$$\begin{split} n_{\rm CS_2} =& 1.580826 + 15238.9 \times \lambda^{-2} + \\ & 4.85783 \times 10^8 \times \lambda^{-4} - \\ & 8.2863 \times 10^{13} \times \lambda^{-6} + \\ & 1.4619 \times 10^{18} \times \lambda^{-8} , \\ n_{\rm CHCL_3} =& 1.431364 + 5632.41 \times \lambda^{-2} - \\ & 2.0805 \times 10^8 \times \lambda^{-4} + \\ & 1.2613 \times 10^{13} \times \lambda^{-6} , \\ n_{\rm C_6\,H_4} =& 1.474775 + 6990.31 \times \lambda^{-2} - \\ & 2.1776 \times 10^8 \times \lambda^{-4} , \end{split}$$

二硫化碳和三氯甲烷具有很高的非线性系数, 其非线性折射率为  $3.2 \times 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W 和  $1.7 \times 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W,比熔融石英的非线性折射率  $3.2 \times 10^{-16}$  cm<sup>2</sup>/W 大两个数量级,是很好的非线性材料。 且在可见及红外波段吸收很小。

为了分析中心波长为 800 nm 的脉冲激光在填 充了上述液体的光子晶体光纤中的传输特点,我们 利用全矢量有限元方法计算基模的传输常量,并且 模拟了激光在三氯甲烷、甲苯和二硫化碳填充的光 子晶体光纤中传输时的基模模式特征。图 2 描述了 800 nm 的脉冲激光在填充了三氯甲烷的光子晶体



图 2 三氯甲烷填充的光子晶体光纤的模场分布 Fig. 2 Distribution of fundamental mode in chloroform-filled PCF

光纤中传输的基模特点,以灰度变化表示了基模的 电场强度变化。由图2可见绝大部分能量被限制在 中间的液芯中。为了分析填充后光子晶体光纤的光 传输原理,对三种液态物质的折射率和光子晶体光纤 包层有效折射率做了比较,如图3所示,由于填充液 态物质的折射率远大于包层有效折射率,激光可在填 充后的光子晶体光纤中遵循全反射原理传输,填充后 光子晶体光纤的传输类型变为折射率引导型。





Fig. 3 Refractive indexes comparison of the several liquids with the HC-PCF's cladding

#### 2.2 液芯光子晶体光纤的色散性质

光纤的群速度色散常数 D 与传输常数 β 的二次圆频率微分成正比,即

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \frac{\mathrm{d}^2 \beta}{\mathrm{d}^2 \omega},\tag{1}$$

图 4 给出了填充三氯甲烷、甲苯和二硫化碳后 光子晶体光纤的色散参量 D。填充了二硫化碳、三 氯甲烷和甲苯后的光子晶体光纤零色散波长分别在 1078.8 nm,775.8 nm和 818.2 nm。当填充物质的 折射率色散相同时,即图 3 中折射率曲线斜率相同, 随着填充物质折射率的增大其零色散波长蓝移。但 是当填充物质本身折射率色散较大时,如二硫化碳,



图 4 液态物质填充后光子晶体光纤的色散参量 D Fig. 4 Dispersion parameter D of liquid-filled PCF

其零色散波长大于1000 nm,色散参量 D 的曲线曲 率也比较大。调节光子晶体光纤的结构参量也不能 使其零色散波长小于 800 nm。填充物的折射率色 散性质对填充后的光子晶体光纤的色散性质影响很 大,其折射率色散越小光子晶体光纤的零色散波长 就越小。此外,减小中芯空气孔的直径可使填充三 氯甲烷及甲苯的光子晶体光纤零色散波长向短波方 向移动。

# 3 飞秒脉冲激光在液态物质填充的光子晶体光纤中传输产生的超连续谱

#### 3.1 理论基础

超短脉冲在非线性介质光纤中传输时满足的基本方程为<sup>[14]</sup>

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{\alpha}{2}A + \frac{i\beta_2}{2}\frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \frac{i\beta_3}{6}\frac{\partial^3 A}{\partial t^3} + \frac{i\beta_4}{24}\frac{\partial^4 A}{\partial t^4} - \frac{i\beta_5}{120}\frac{\partial^5 A}{\partial t^5} + \frac{i\beta_6}{720}\frac{\partial^6 A}{\partial t^6} = i\gamma\left(1 + \frac{i}{\omega_0}\frac{\partial}{\partial t}\right) \times \left\{ \left[A(z,t)\right] \int_{-\infty}^{\infty} R(t')t' \left|A(z,t-t')\right|^2 dt' \right\}, \quad (2)$$

方程左边为线性项:第一项表示脉冲传输,A 为脉冲 慢变包络振幅,z 为脉冲在光纤中传输的距离;第二 项表示光纤损耗(α 为光纤损耗系数),三氯甲烷在 可见及红外波段吸收很小,为了计算方便在以下的 模拟中取 20 dB/km,但是,因为传播距离仅仅几个 微米,其损耗非常小。而且经过多次模拟计算在这么 短的传输距离下,损耗 α 取值大小对输出谱宽度及 包络几乎没有影响;第三项表示色散效应,共考虑到 六阶色散,β; 为各阶群速度色散常数。方程右边为非 线性项 γ 为非线性系数,

$$\gamma = n_2 \, \frac{\omega}{cA_{\rm eff}},\tag{3}$$

其中

$$A_{\text{eff}} = \frac{\left[ \iint\limits_{-\infty}^{\infty} |F(x,y)|^2 dx dy \right]^2}{\iint\limits_{-\infty}^{\infty} |F(x,y)|^4 dx dy},$$

表示光纤传输模式的有效面积, *F*(*x*,*y*)为基模模 分布函数。*R*(*t*<sup>'</sup>)为响应函数,包括电学的和振动的 影响,假设电学的影响几乎是瞬时的,*R*(*t*<sup>'</sup>)可表 示为

$$R(t') = (1 - f_{\rm R})\delta(t) + f_{\rm R}h_{\rm R}(t), \qquad (4)$$

其中 f<sub>R</sub> 表示延时拉曼响应对非线性极化的贡献,

h<sub>R</sub>(t)为拉曼响应函数。对于三氯甲烷等各向异性 分子组成的液体,在光波场中分子具有沿外加电场 方向排列的趋势即分子重取向,这也是它们具有较 高非线性折射率的主要原因。分子重取向的弛豫时 间通常为几个皮秒,比熔融石英的拉曼响应时间大 很多,因此三氯甲烷的拉曼响应函数瞬态变化也要 复杂得多,在实验中一般用时间分辨的光学克尔效 应方法测量<sup>[15,16]</sup>。根据其拉曼响应的时间不同,把 它分为三个独立的部分:1)扩散重取向,响应时间大 于 1.5 ps;2)响应时间在 400~600 fs 的中间部分; 3)小于 170 fs 的超快部分。T. F. Laurent<sup>[16]</sup>等给出 了三氯甲烷拉曼响应的近似解析形式,理论结果与实 验曲线符合得很好。将振动响应用  $V_k$  表示,分子间 核响应用  $N_i$  表示,拉曼响应函数可以表示为

$$h_{R}(t) = \Theta(t) \Big[ \sum_{i} N_{i}(t) + \sum_{k} V_{k}(t) \Big],$$
(5)  

$$\Theta(t) = \Big[ 1 + th(t/0.0219) \Big]/2;$$

$$N_{1}(t) = 0.2265 \times \sin(38.7t) \exp(-t/0.195);$$

$$N_{2}(t) = 0.1677 \times t/0.211 \times \exp(-t/0.211);$$

$$N_{3} = 0.0243 \times \Big[ \exp(-t/2.94) - \exp(-t/0.195) \Big];$$
(6)  

$$V_{1} = 0.0605 \times \sin(260.1t) \times \exp(-t/1.38);$$

$$V_{2} = 0.0116 \times \sin(365.2t) \exp(-t/1.11);$$

$$V_{3} = 0.0018 \times \sin(760.5t) \exp(-t/1.48).$$

图 5 描述了三氯甲烷液体和熔融石英的拉曼响 应函数。虚线表示的是三氯甲烷的拉曼响应函数, 其中的快速振荡是因为三氯甲烷分子在 226 cm<sup>-1</sup> 处的拉曼谱所致。由图中可见,三氯甲烷分子的拉 曼响应时间比熔融石英的要长很多。





Fig. 5 Raman response function for chloroform and silica

利用分步傅里叶方法对(2)式进行数值求解,为 了尽量与实验中所用的钛宝石飞秒激光取得一致, 设定入射激光脉冲函数为双曲正割函数,中心波长 为 800 nm、峰值功率为 4000 W、脉冲半峰全宽 *T*<sub>FWHM</sub>为 120 fs。图 6 描述了在相同入射脉冲参数、 色散条件和光纤长度 5 mm 下在三氯甲烷填充的光 子晶体光纤产生的超连续谱与在融石英芯光子晶体 光纤中的输出光谱的比较。很明显,在这么短的传 输距离和这么小的入射功率下融石英芯的光子晶体 光纤输出谱基本上没有得到展宽,只有高阶色散使 中心峰蓝移。而对于三氯甲烷填充的光子晶体光



图 6 三氯甲烷填充的空心光子晶体光纤与融石英芯 光子晶体光纤的输出光谱比较



纤,由于其非线性系数比融石英芯光子晶体光纤大 两个数量级左右,可以在较短传输距离和较弱的入 射功率下表现出较强的非线性效应,光谱得到很大 展宽。由模拟的过程及结果可以看到,在液芯光子 晶体光纤中产生超连续谱的机制与在熔融石英芯光 子晶体光纤中产生的机制相似:反常色散区群速度 色散和很强的自相位调制共同作用产生高阶孤子, 而自变陡效应和脉冲内拉曼散射效应造成孤子分 裂;若增大入射脉冲激光的功率和光子晶体光纤的 长度可得到频谱范围更宽更平坦的超连续谱。不同 的是由于这些液芯光子晶体光纤的非线性系数比熔

光

融石英芯光子晶体光纤大两个数量级左右,从而表现 出更强的非线性效应;同时,这些液体因为分子重取 向造成的拉曼响应时间变长,对于飞秒脉冲激光,液 芯光子晶体光纤表现出稍弱的脉冲内拉曼散射效应。

3.2 不同脉冲宽度的激光在液芯光子晶体光纤中 超连续谱的产生

由 3.1 节中分析得到三氯甲烷分子的拉曼响应 时间为几个皮秒,远大于入射脉冲激光的脉宽,为了 了解脉冲激光在填充三氯甲烷的光子晶体光纤中传 输时脉冲延迟时间对输出频谱的影响,我们模拟了 不同脉冲宽度条件下产生的超连续谱。

图 7 分析了峰值功率均为 2000 W,脉冲半峰全 宽 T<sub>FWHM</sub>分别为 60 fs,120 fs,240 fs 的激光在 5 mm 长,零色散波长为 775.8 nm 的三氯甲烷芯的光子 晶体光纤中产生的超连续谱(依次从上到下对应不 同脉冲宽度产生的超连续谱)。在相同峰值功率的 情况下,它们具有相似的频谱包络和一些相同的峰。 但很明显地看出:当脉冲宽度较小时频谱分裂的峰 很少,这是因为在脉冲延时时间比物质的拉曼响应 小很多的情况下,脉冲内拉曼散射效应较小,致使因 为脉冲内拉曼散射作用产生的频谱展宽增大。脉冲 延时时间对液芯光子晶体光纤中超连续谱的产生有 很大的影响。



图 7 具有不同脉冲宽度的脉冲激光在三氯甲烷填充的 空芯光子晶体光纤中产生的超连续谱

- Fig. 7 Calculated output spectrum generated in the chloroformfilled HC-PCF with different input pulse durations
- 4 结 论

提出了一种实现高非线性光子晶体光纤的新方法,研究了在空芯光子晶体光纤的纤芯空气孔中填充高折射率、高非线性系数的液态物质三氯甲烷后 光子晶体光纤的模式及色散性质。结果表明,填充 三氯甲烷后,其零色散波长可在 800 nm 左右调节, 因此可使中心波长为 800 nm 的钛宝石飞秒激光脉 冲在填充后的光子晶体光纤反常色散区传输产生, 有利于超连续谱的产生。由于填充物质有较高的非 线性折射率,激光脉冲可在较短的传输距离及较小 的损耗下得到频谱范围较宽的超连续谱。

#### 参考文献

- 1 R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hansch et al.. Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy[J]. Phys. Rev. Lett., 2000, 85(11): 2264~2267
- 2 I. Hartl, X. D. Li, C. Chudoba *et al.*. Ultrahigh-resolution optical coherence tomography using continuum generation in an air-silica microstructure optical fiber [J]. *Opt. Lett.*, 2001, 26(9): 608~610
- 3 H. Kano, H. Hamaguchi. Ultrabroadband (> 2500 cm<sup>-1</sup>) multiplex coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using a supercontinuum generated from a photonic crystal fiber[J]. Appl. Phys. Lett., 2005, 86(12): 121113~121115
- 4 K. M. Hilligsoe, H. N. Paulsen, J. Thogersen *et al.*. Initial steps of supercontinuum generation in photonic crystal fibers[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(9): 1887~1893
- 5 Sun Xiwen, Wang Qingyue, Hu Minglie *et al.*. Numerical analysis of nonlinear propagation in photonic crystal fiber[J]. *Chinese J. Lasers*, 2005, **32**(11): 1478~1483
  孙喜文,王清月,胡明列 等. 光子晶体光纤中非线性传输的数值 分析[J]. 中国激光, 2005, **32**(11): 1478~1483
- 6 Zhang Jun, Wei Zhiyi, Wang Zhaohua *et al.*. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber by femtosecond pulses laser [J]. Acta Optica Sinica, 2003, 23(4): 511~512
  张 军,魏志义,王兆华等.利用光子晶体光纤产生超连续飞秒激光光谱[J]. 光学学报, 2003, 23(4): 511~512
- 7 F. G. Omenetto, N. A. Wolchover, M. R. Wehner *et al.*. Spectrally smooth supercontinuum from 350 nm to 3  $\mu$ m in subcentimeter lengths of soft-glass photonic crystal fibers[J]. *Opt.* Exp., 2005, **14**(11): 4928~4934
- 8 A. B. Fedotov, E. E. Serebryannikov, A. A. Ivanov *et al.*. Spectral transformation of femtosecond Cr: forsterite laser pulses in a flint-glass photonic-crystal fiber [J]. *Appl. Opt.*, 2006, 45(26): 6823~6830
- 9 G. S. He, P. N. Prasad. Stimulated Kerr scattering and reorientation work of molecules in liquid CS<sub>2</sub>[J]. *Phys. Rev. A*, 1990, 41(5): 2687~2697
- 10 S. Yiou, P. Delaye, A. Rouvie *et al.*. Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber [J]. *Opt. Exp.*, 2005, 13(12): 4786~4791
- 11 F. M. Cox, A. Argyros, M. C. J. Large. Liquid-filled hollow core microstructured polymer optical fiber[J]. Opt. Exp., 2006, 14(9): 4135~4140
- 12 D. C. Zografopoulos, E. E. Kriezis, T. D. Tsiboukis. Photonic crystal-liquid crystal fibers for single-polarization or highbirefringence guidance[J]. Opt. Exp., 2006, 14(2): 914~925
- 13 A. Samoc. Dispersion of refractive properties of solvents: Chloroform, toluene, benzene, and carbon disulfide in ultraviolet, visible, and near-infrared [J]. J. Appl. Phys., 2003, 94(9): 6167~6174
- 14 G. P. Agrawal. Nonlinear Fiber Optics (Optics and Photonics)
   [M]. Third Edition, San Diego: Academic Press, 2001. 46~47
- 15 D. McMorrow, W. T. Lotshaw, G. A. Kenney-wallace. Femtosecond optical Kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1988, 24(2): 443~454
- 16 T. F. Laurent, H. Hennig, N. P. Ernsting *et al.*. The ultrafast optical Kerr effect in liquid fluoroform: an estimate of the collision-induced contribution [J]. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2000, 2(12): 2691~2697