非周期极化铌酸锂晶体宽带倍频的理论研究

蒋 建,张建东,王 凯,肖 璇,张祖兴

南京邮电大学光电工程学院先进光子技术实验室, 江苏南京 210023

摘要 宽带准相位匹配(QPM)在多波长和超短脉冲倍频等领域有着广泛应用。分析了铌酸锂晶体的准相位匹配 和群速度匹配条件,利用遗传算法,对非周期极化铌酸锂(APPLN)晶体的结构进行优化设计,并提出了一种通过 适当调整基波的位置和数量来优化非周期极化铌酸锂晶体倍频带宽的设计方法。研究表明,对于 0 型(e+e→e)准 相位匹配,在群速度匹配点附近,周期极化铌酸锂(PPLN)晶体倍频带宽为 167 nm,而非周期极化铌酸锂晶体最大 倍频带宽可达 440 nm,带宽增加了 273 nm;I型(o+o→e)准相位匹配下,周期极化铌酸锂晶体在群速度匹配点附 近的倍频带宽为 59 nm,而非周期极化铌酸锂晶体最大倍频带宽可达 153 nm,带宽增加了 94 nm。 关键词 非线性光学;宽带倍频;非周期极化晶体;群速度匹配

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/LOP54.041901

Theoretical Study on Broadband Frequency Doubling in Aperiodically Poled Lithium Niobate Crystal

Jiang Jian, Zhang Jiandong, Wang Kai, Xiao Xuan, Zhang Zuxing

Advanced Photonics Technology Laboratory, School of Opto-Electronic Engineering, Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing, Jiangsu 210023, China

Abstract Broadband quasi-phase-matching (QPM) is widely used in many fields, such as multi-wavelength and ultrashort pulse frequency doubling. The conditions of QPM and group velocity matching in lithium niobate crystal are analyzed. The optimized structure of aperiodically poled lithium niobate (APPLN) crystal is designed by genetic algorithm. Also, we present a method of optimizing the APPLN crystal second-harmonic generation (SHG) bandwidth by appropriately adjusting the position and quantity of the fundamental wavelengths. The results show that for QPM of type 0 ($e+e \rightarrow e$) near the group velocity matching points, the SHG bandwidth in periodically poled lithium niobate (PPLN) crystal is about 167 nm, while the maximum SHG bandwidth in APPLN is up to 440 nm, and the bandwidth in PPLN is about 59 nm, while the maximum SHG bandwidth in APPLN is up to 153 nm, and the bandwidth in PPLN is about 59 nm.

Key words nonlinear optics; broadband frequency doubling; aperiodically poled crystal; group velocity matching OCIS codes 190.2620; 190.4360

1 引 言

宽带准相位匹配(QPM)在多波长和超短脉冲倍频(SHG)等领域有着重要应用,受到越来越多的重视^[1-5]。为此,国内外提出了许多宽带准相位匹配倍频的解决方案。其中一类是通过补偿晶体的色散效应,如光谱角色散^[6-7],多晶体级联^[8-9],啁啾匹配^[10]及群速度匹配(GVM)^[11-12]等来实现宽带倍频,如 2002年,Yu 等^[13]利用群速度匹配在掺氧化镁周期极化铌酸锂(MgO:PPLN)晶体中实现 52 nm 倍频带宽;另一类是通过设计合适的非线性晶体结构来补偿倍频过程中的相位失配,如 2012 年 Dang 等^[14]利用 MgO:PPLN 晶

收稿日期: 2016-10-14; 收到修改稿日期: 2016-12-15

基金项目: 江苏省高校自然科学研究基金(14KJB140010)、南京邮电大学基金(NY213029)、江苏特聘教授资助项目 (RK002STP14001)、江苏省"六大人才高峰"项目(2015-XCL-023)

作者简介: 蒋 建(1976—),男,博士,硕士生导师,主要从事非线性光学和光纤光学方面的研究。 E-mail: jiangjian@njupt.edu.cn

激光与光电子学进展

体实现了5.5 nm的平坦带宽,2015 年 Bostani 等^[15]利用变迹啁啾 PPLN 晶体获得了 30 nm 的带宽。上述方 案有效拓展了倍频过程的波长接收带宽,但其倍频带宽一般很难超过几十纳米,限制了其应用范围。

为进一步拓展倍频带宽,本文首先分析了铌酸锂(LN:LiNbO₃)实现准相位匹配和群速度匹配的条件, 在满足群速度匹配的情况下,采用合适单元畴长,利用遗传算法^[16]对非周期极化铌酸锂(APPLN)晶体进行 设计,并对其带宽倍频特性展开研究。研究表明,APPLN 晶体中的 0 型(e+e→e)和 I 型(o+o→e)准相位 匹配倍频带宽均获得极大的拓展,分别达到 440 nm 和 153 nm。同时,针对非周期极化结构,还提出了通过 适当调整基波的位置和数量以达到提高倍频转换带宽的设计方法。

2 理论分析

2.1 准相位匹配与群速度匹配分析

在小信号近似下,准相位匹配倍频的转换效率正比于 sinc²($\Delta k/L$),其中 Δk 为相位失谐量,L 为晶体长度,sin $x \equiv sinx/x^{[17]}$,此时,倍频的接收带宽可定义为倍频转换效率 1/2 时基波的范围^[18]。设基波和二次谐波在材料中的折射率分别为 n_{ω} 和 $n_{2\omega}$,当满足准相位匹配条件时,利用晶体提供的倒格矢 G,有

$$\Delta k - G = k_{2\omega} - k_{\omega} - G = \frac{4\pi}{\lambda} (n_{2\omega} - n_{\omega}) - G = 0, \qquad (1)$$

式中 $G = 2\pi/\Lambda$, $k_{2\omega}$ 和 k_{ω} 分别是二次谐波和基波的波矢, 对于周期性极化晶体, 极化周期 $\Lambda = \lambda/[2(n_{2\omega} - n_{\omega})]$ 。 倍频时, 将相位失谐量对波长求导可得^[19]

$$\frac{\mathrm{d}\Delta k\left(\lambda\right)}{\mathrm{d}\lambda} = \frac{4\pi c}{\lambda^2} \left(\frac{1}{v_{\omega}} - \frac{1}{v_{2\omega}}\right),\tag{2}$$

式中 v_{ω} 和 $v_{2\omega}$ 分别为基波和谐波的群速度(GV),定义 $1/v_{\omega}-1/v_{2\omega}$ 为群速度失谐量,当群速度失谐量为0时, $v_{\omega}=v_{2\omega}$,即满足群速度匹配条件。

2.2 非周期极化晶体倍频分析

与周期性极化晶体相比,非周期极化晶体能灵活提供所需的倒格矢来补偿相位失谐量,因此,能更有效 地提高倍频的带宽。所采用的非周期极化晶体由长度相同的单元畴构成,每个畴的极化方向可以为向上也 可为向下。在小信号近似和慢变振幅近似下,二次谐波的转化效率 η 为^[20]

$$\eta = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{8\pi^2 |d_{33}|^2 I_{\omega}L^2}{c\varepsilon_0 \lambda^2 n_{2\omega} n_{\omega}^2} \left| \frac{1}{L} \int_0^L d(z) \exp(i\Delta kz) dz \right|^2, \qquad (3)$$

式中 $P_{2\omega}$ 和 P_{ω} 分别是二次谐波和基波的功率, d_{33} 为晶体的非线性系数, I_{ω} 为基波的光强, λ 为基波的波长, d(z)是描述畴反转结构的归一化常数,d(z)=1表示极化方向向上;d(z)=-1表示极化方向向下。 Δk 为 相位 失 谐 量, L 为 晶 体 长 度, c 为 光 速, ε_0 为 真 空 电 容 率。定 义 有 效 非 线 性 系 数 $d_{\text{reff}}(\lambda) = \left| \frac{1}{L} \int_{0}^{L} d(z) \exp(i\Delta kz) dz \right|$,其中 $d_{\text{reff}}(\lambda)$ 可用来描述二次谐波转换效率^[21],设每个单元畴的长度 为 ΔL ,晶体由 N 个长度相同的畴组成,晶体总长 $L = N\Delta L$,则

$$d_{\text{reff}}(\lambda) = \left| \frac{1}{L} \int_{0}^{L} d(z) \exp(i\Delta kz) dz \right| = \frac{1}{L} \left| \sum_{q=0}^{N-1} d(z) \int_{z_{q}}^{z_{q+1}} \exp(i\Delta kz) dz \right| = \frac{1}{L} \left| \sum_{q=0}^{N} d(z) \frac{\exp(i\Delta kz_{q+1}) - \exp(i\Delta kz_{q})}{i\Delta k} \right| = \frac{1}{L\Delta k} \left| \sum_{q=0}^{N} d(z) \left[\exp(i\Delta kz_{q+1}) - \exp(i\Delta kz_{q}) \right] \right|, (4)$$

式中 $q=0,1,2,3,\dots,N$,每个单元畴位于 $z_q \sim z_{q+1}$ 内。通过对其优化即可得到所需的非周期极化晶体结构。

3 模拟与讨论

所采用的晶体为长度 1 cm 的铌酸锂,温度设置为 100 ℃,其 Sellmeier 方程由参考文献[22]给出。图 1 (a)给出了 PPLN 晶体在 0 型(e+e→e)准相位匹配倍频情况下的群速度失谐量和极化周期与波长关系的曲线,由图 1(a)可看出当波长小于 2.740 μ m 时,群速度失谐量小于 0,此时 $v_{\omega} > v_{2\omega}$;当波长大于 2.740 μ m 时,群速度失谐量大于 0,此时 $v_{\omega} = v_{2\omega}$,满足群速

度匹配条件。在中心波长 $\lambda = 2.740 \ \mu m$ 处,根据 $\Lambda = \lambda / [2(n_{2\omega} - n_{\omega})]$,可计算出 QPM 极化周期 $\Lambda = 35.23 \ \mu m$,在温度固定的情况下只与波长有关。在同时满足 QPM 和群速度匹配条件下,根据 sinc²($\Delta k / L$),模拟了极化周期 $\Lambda = 35.23 \ \mu m$ 时 PPLN 晶体的 0 型倍频情况,图 1(b)给出了相应的模拟结果,由图 1(b)可看出 PPLN 晶体倍频的中心波长为2.740 μm ,此时,倍频的带宽为 167 nm。



图 1 (a) PPLN 晶体群速度失谐量及极化周期与基波波长的关系;(b) PPLN 晶体 0 型倍频归一化转换效率曲线 Fig. 1 (a) GV mismatching and polarization period versus fundamental wavelength in PPLN crystal; (b) normalized conversion efficiency curve of frequency doubling for type 0 in PPLN crystal

在上述群速度匹配点,采用 APPLN 晶体,研究倍频的带宽与 APPLN 晶体参数的关系。APPLN 晶体 结构设计流程如下^[23]。首先,初始化种群。设随机生成的初始种群 P(0)由 200 个个体组成,每个个体用 APPLN 晶体正负畴的二进制字符串来表示其染色体,其中 1 代表正畴,0 代表负畴,则每个个体代表了一种 非周期结构。选择编码方案,使解空间与染色体一一对应。设置进化代数器 t,并将最大进化代数设置为 T=1000。计算第 t 代种群 P(t)中每个个体的适应度,适应度反映了解的优劣性。然后,进行选择、交叉和 变异等一系列遗传操作而得到新一代的种群 P(t+1)。最后,对终止条件进行判断:若 $t \leq T$,则 t+1,循环 跳转到 t+1 代个体适应度的计算;当 t > T 时,将 P(1000)中适应度值最大的个体作为最优解输出,即可得 到近似最优的非周期结构,终止运算。优化后的 APPLN 晶体结构示意图如图 2 所示,其中箭头向上表示极 化方向向上(正畴),箭头向下表示极化方向向下(负畴),单位畴长为 3 μ m,共有 3333 个畴,晶体总长约为 1 cm。将上述优化后的畴结构代入(3)式,可获得倍频的转换效率曲线。



图 2 APPLN 晶体结构示意图 Fig. 2 Schematic of APPLN crystal structure

首先研究非周期极化晶体倍频带宽与基波个数及其间距的关系。为此,采用三个基波,研究基波间距对 倍频的影响。其中,2.740 μm 基波固定不变,两侧基波间隔分别取为 50,80,120,125 nm,图 3 给出了相应 的模拟结果,基波在图中用虚线表示。由图 3(a)~(c)可知,前三种波长间隔时的倍频带宽依次为 240,269, 319 nm,可以看到,在群速度匹配点附近,非周期结构与周期结构类似,在此波段仍具有宽带的准相位匹配 特性。此外,保持中间波长位置不变而两侧基波分别向两侧移动时,倍频效率曲线会向两侧拓展,从而使倍 频带宽增加,但达到一定的带宽后,基波间距增大会导致原来的宽峰分裂成三个窄峰,如图 3(d)所示。

在图 3(c)的基础上,改变基波的数量,研究其对倍频带宽的影响。图 4(a)给出仅有 2.620 μm 和 2.860 μm两个基波时的倍频带宽,由图可知,倍频后带宽分别为 63 nm 和 72 nm 的两个准相位匹配峰未能 合成一个较宽的峰,说明当基波间隔过大时,会使倍频效果大大减弱;图 4(b)~(d)给出在上述两个基波中



图 3 三个基波,中间波长固定为 2.740 μm,不同波长间隔时的倍频带宽。(a) 50 nm;(b) 80 nm;(c) 120 nm;(d) 125 nm Fig. 3 With three fundamental waves and central wavelength of 2.740 μm fixed, the SHG bandwidth of different wavelength intervals. (a) 50 nm; (b) 80 nm; (c) 120 nm; (d) 125 nm

间等间隔地增加1个、4个和7个基波时的倍频模拟结果,由图4(b)~(d)可看出相应的倍频带宽分别为319,320,319 nm,即此时基波数量的增加对倍频带宽的影响较小。



图 4 (a)固定 2.620 μm 和 2.840 μm 两个基波时的倍频带宽;在上述两个基波中间等间隔地增加 (b)1个,(c)4个,(d)7个基波时的倍频带宽

Fig. 4 (a) SHG bandwidth with two fundamental wavelengths of 2.620 μ m and 2.840 μ m fixed; SHG bandwidth when (b) 1, (c) 4, (d) 7 fundamental waves are added with equal space between the two fundamental waves respectively

为了进一步拓宽倍频带宽,保持基波 2.620,2.740,2.860 μm 不变,左侧和右侧每隔 10 nm 各增加一个 基波进行倍频模拟,图 5(a)~(d)分别给出了两侧各增加 1 个、4 个、7 个和 8 个基波时的倍频情况,发现效 率曲线会同时向两侧拓宽,且向右拓展比向左侧稍多,当左右两侧各增加 7 个基波时带宽达到最大,为 440 nm;两侧再各增加一个基波时倍频曲线发生分裂,倍频带宽变小。

同时研究了铌酸锂晶体的 I 型(o+o→e)准相位匹配倍频情况,对于 PPLN 晶体,满足群速度匹配条件的波长为 λ =1.650 µm,此时的准相位匹配极化周期 Λ =25.25 µm。图 6(a)给出了同时满足准相位匹配和群速度匹配条件下,晶体长度约为 1 cm 时 PPLN 晶体的倍频效率曲线,由图 6(a)可看出 PPLN 晶体倍频的中心波长为 1.650 µm,带宽为 59 nm;对于 APPLN 晶体,利用与 0 型倍频类似的优化方法,保持 1.615, 1.650,1.695 µm 三个基波不变,晶体左右两侧每隔 5 nm 增加一个基波,当每侧各增加 4 个基波时得到的最大带宽为 153 nm,如图 6(b)所示。



图 5 保持 2.620,2.740,2.860 μm 三基波不变,两侧每隔 10 nm 各增加 (a)1个,(b)4个,(c)7个,(d)8个基波时的倍频带宽

Fig. 5 With three fundamental wavelengths of 2.620, 2.740, 2.860 μ m fixed, SHG bandwidth when (a) 1, (b) 4, (c) 7, (d) 8 fundamental wavelengths are added at 10 nm interval on both sides



fundamental waves and SHG bandwidth in APPLN crystal

4 结 论

分析了铌酸锂晶体的准相位匹配和群速度匹配条件,并利用遗传算法对单位畴长 3 μ m、晶体总长约 1 cm的 APPLN 晶体进行了优化,得到了能实现较大倍频转换带宽的近似最优 APPLN 晶体,同时讨论了改 变基波的数量和位置对倍频带宽带来的影响。对 PPLN 晶体以及优化后的 APPLN 晶体中的 0 型和 I 型倍 频过程进行模拟显示: PPLN 晶体 0 型倍频中心波长 $\lambda = 2.740 \ \mu$ m,极化周期 $\Lambda = 35.23 \ \mu$ m,倍频带宽 167 nm, APPLN 晶体 0 型倍频的最大倍频带宽为 440 nm,带宽较 PPLN 晶体增加了 273 nm; PPLN 晶体的 I 型倍频中心波长 $\lambda = 1.650 \ \mu$ m,极化周期 $\Lambda = 26.25 \ \mu$ m,倍频带宽 59 nm, APPLN 晶体 I 型倍频最大倍频带宽为153 nm,带宽增加了 94 nm;同时在优化非周期极化晶体时可通过适当调整基波的位置和数量来增加倍频带宽,此结论可为非周期倍频晶体的设计提供一定的参考。



- [1] Chen B Q, Zhang C, Hu C Y, et al. High-efficiency broadband high-harmonic generation from a single quasi-phasematching nonlinear crystal[J]. Phys Rev Lett, 2015, 115(8): 083902.
- [2] Zhang L Y, Liu Y J, Huang J J, et al. Second harmonic generation of ultrashort pulses in refractive-index-linearmodulating nonlinear crystals[J]. J Opt Soc Am B, 2014, 31(5): 1202-1210.
- [3] Wen Xin, Han Yashuai, He Jun, et al. Generation of 397.5 nm ultra-violet laser by frequency doubling in a PPKTP-

crystal semi-monolithic resonant cavity[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(4): 0414001. 温 馨, 韩亚帅,何 军,等. PPKTP 晶体半整体谐振腔倍频的 397.5 nm 紫外激光输出[J]. 光学学报, 2016, 36 (4): 0414001.

- [4] Yang Sheng, Huang Xiaojun, Wu Zhaohui, *et al*. Broadband frequency doubling of Er-fiber mode-locked laser in BBO crystal[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2015, 52(12): 121901.
 杨 盛,黄小军,吴朝辉,等. BBO 晶体用于掺铒光纤锁模激光宽带倍频的研究[J]. 激光与光电子学进展, 2015, 52 (12): 121901.
- [5] Li Huijuan, Zhang Miao, Li Fengqin. High-power single-frequency 461 nm generation from an intracavity doubling of Ti: sapphire laser with LBO[J]. Chinese J Lasers, 2016, 43(3): 0302003.
 李慧娟,张 森,李凤琴.高功率单频 LBO 腔内倍频 461 nm 钛宝石激光器[J].中国激光, 2016, 43(3): 0302003.
- [6] Cardoso L, Pires H, Figueira G. Increased bandwidth optical parametric amplification of supercontinuum pulses with angular dispersion[J]. Opt Lett, 2009, 34(9): 1369-1371.
- [7] Zhang Xin, Zhang Hengli, Mao Yefei, et al. Efficient methods of green output by second harmonic generation with short pulse broad-band laser[J]. Chinese J Lasers, 2016, 43(2): 0202003.

张 新,张恒利,毛叶飞,等. 高效短脉冲宽带倍频绿光实现方法[J]. 中国激光, 2016, 43(2): 0202003.

- [8] Kumar S C, Samanta G K, Devi K, et al. High-efficiency, multicrystal, single-pass, continuous-wave second harmonic generation[J]. Opt Express, 2011, 19(12): 11152-11169.
- [9] Deng Qinghua, Zhang Xiaomin, Ding Lei, et al. Stabilizing second harmonic generation output using cascaded crystals
 [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(2): 024213.
 邓青华,张小民,丁 磊,等.应用级联倍频方法提高倍频系统输出稳定性研究[J].物理学报, 2011, 60(2): 024213.
- [10] Han Wei, Zheng Wanguo, Yang Yisheng, et al. Second-harmonic generation at retracing point of phase matching with pre-chirp compensation[J]. Acta Optica Sinica, 2007, 27(1): 133-137.

韩 伟,郑万国,杨义胜,等. 啁啾补偿的折返点匹配二倍频[J]. 光学学报, 2007, 27(1): 133-137.

- [11] Lee K J, Yoon C S, Rotermund F. Analysis of possible group-velocity-matched broadband second-harmonic generation in various periodically poled nonlinear crystals[J]. Jap J Appl Phys, 2005, 44(3): 1264-1268.
- [12] Zhang J F, Chen Y P, Lu F, et al. Effect of MgO doping of periodically poled lithium niobate on second-harmonic generation of femtosecond laser pulses[J]. Appl Opt, 2007, 46(32): 7792-7796.
- [13] Yu N E, Ro J H, Cha M, et al. Broadband quasi-phase-matched second-harmonic generation in MgO-doped periodically poled LiNbO₃ at the communications band[J]. Opt Lett, 2002, 27(12): 1046-1048.
- [14] Dang W R, Chen Y P, Chen X F. Performance enhancement for ultrashort-pulse wavelength conversion by using an aperiodic domain-inverted optical superlattice[J]. Photon Technol Lett, 2012, 24(5): 347-349.
- [15] Bostani A, Ahlawat M, Tehranchi A, et al. Design, fabrication and characterization of a specially apodized chirped grating for reciprocal second harmonic generation[J]. Opt Express, 2015, 23(4): 5183-5189.
- [16] Kong Y, Chen X F, Xia Y X. Optimized second harmonic generation of femtosecond pulse by phase-blanking effect in aperiodically optical superlattice[J]. Chinese Phys Lett, 2008, 25(4): 1297-1300.
- [17] Zhang Yuantao, Qu Qiuzhi, Qian Jun, *et al.* Thermal effect analysis of 1560 nm laser frequency doubling in a PPLN crystal[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(7): 0708002.
 张远涛,屈求智,钱 军,等. PPLN 晶体 1560 nm 激光倍频过程的热效应分析[J].中国激光, 2015, 42(7): 0708002.
- [18] Jiang J, Chang J H, Feng S J, et al. Mid-IR multiwavelength difference frequency generation based on fiber lasers[J]. Opt Express, 2010, 18(5): 4740-4747.
- [19] Prakash O, Lim H-H, Kim B-J, et al. Collinear broadband optical parametric generation in periodically poled lithium niobate crystals by group velocity matching[J]. Appl Phys B, 2008, 92(4): 535-541.
- [20] Chen X F, Wu F, Zeng X L, et al. Multiple quasi-phase-matching in a nonperiodic domain-inverted optical superlattice
 [J]. Phys Rev A, 2004, 69(1): 013818.
- [21] Lu M, Chen X F, Chen Y P, et al. Algorithm to design aperiodic optical superlattice for multiple quasi-phase matching
 [J]. Appl Opt, 2007, 46(19): 4138-4143.

- [22] Edwards G J, Lawrence M. A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate[J]. Opt Quant Elect, 1984, 16(4): 373-375.
- [23] Lei Yingjie, Zhang Shanwen, Li Xuwu, et al. Matlab genetic algorithm toolbox and its application[M]. Xi'an: Xidian University Press, 2005: 1-105.

雷英杰,张善文,李续武,等. Matlab遗传算法工具箱及应用[M].西安:西安电子科技大学出版社,2005:1-105.