

飞秒脉冲的二次谐波理论和实验研究

沈晋汇 何慧娟 刘玉璞 张影华 王之江

(中国科学院上海光学精密机械研究所激光技术开放研究实验室, 上海 201800)

吴 伯 昌

(中国科学院福建物质结构研究所, 福州 350002)

提 要

本文分析了小信号情况下飞秒脉冲的倍频特性, 在非耗尽近似下, 得出了飞秒脉冲二次谐波波形及效率的解析解, 在时间域内, 对一般条件的耦合波方程进行了数值解, 分析了相位失配对飞秒脉冲倍频波形及效率的影响。

用 0.5 mm 厚的一类匹配 LBO 晶体对碰撞锁模激光器产生的 80 fs 超短脉冲进行了腔外倍频实验, 实验结果与理论计算符合得很好。

关键词: 飞秒脉冲, 二次谐波, 运动坐标系变换。

一、引 言

众所周知, 由于非线性晶体群速度色散的影响, 使得超短脉冲非线性光学过程的耦合波方程求解变得比较复杂。对于相位匹配情况, 某些特定波形的超短脉冲的倍频过程, 已经求得了解析解^[1,2]。单频光倍频过程中, 相位失配的影响也已经获得了稳态解^[3,9]。在一般条件下, 超短脉冲的倍频通常需要采用傅里叶分析的方法^[4]。文献[1, 5, 6]对小信号情况超短脉冲的二次谐波进行了解析分析, 对特定波形、具有相位调制的超短脉冲的倍频过程则进行了数值解。

本文将采用基波脉冲和二次谐波脉冲运动时间坐标系变换的方法, 在时间域对 fs 超短脉冲的倍频过程进行分析; 导出非抽空近似、相位匹配条件下, fs 超短脉冲二次谐波波形及效率的解析解。并对一般条件下耦合波方程进行数值求解。最后, 通过 LiB₃O₅ (LBO) 晶体对碰撞锁模环形染料激光器产生的 fs 超短脉冲的腔外倍频实验, 对理论分析的某些结果进行验证。

二、小信号近似, 相位匹配条件下, 耦合波方程的解析解

利用慢变振幅近似, 可以很容易得到与时间有关的倍频过程的耦合波方程^[9]

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{g_1}} \frac{\partial}{\partial t}\right) E_1(z, t) &= iK E_1(z, t) E_2(z, t) \exp(-i\Delta kz), \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{g_2}} \frac{\partial}{\partial t}\right) E_2(z, t) &= iK E_1^2(z, t) \exp(i\Delta kz), \\ E_j(z, t) &= A_j(z, t) \exp[i\varphi_j(z, t)], \quad (j=1, 2) \\ K &= \omega_1 \sqrt{\mu_0/\varepsilon_r \varepsilon_0} \chi_e = (\omega_2/2) \sqrt{\mu_0/\varepsilon_r \varepsilon_0} \chi_e, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 $E_j(z, t)$ 为脉冲的复包络, $A_j(z, t)$, $\varphi_j(z, t)$ 分别为脉冲的实振幅和位相, 都是 z 的慢变函数。 $\chi_e = 2d_{\text{eff}}$ 为晶体的有效非线性系数, v_{g_1} 、 v_{g_2} 分别表示基波和二次谐波脉冲在非线性晶体中的群速度。 $\varepsilon_r = \varepsilon_r(\omega_1) \approx \varepsilon_r(\omega_2)$ 为晶体的相对介电常数。以 $\eta_1 = t - (z/v_{g_1})$, $\eta_2 = t - (z/v_{g_2})$ 分别代入(1)式, 则耦合波方程在基波和二次谐波运动坐标系内表示为

$$\frac{\partial}{\partial z} E_1(z, \eta_1) = iK E_1^*(z, \eta_1) E_2^*(z, \eta_1) \exp(-i\Delta kz), \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_2(z, \eta_2) = iK E_1^2(z, \eta_2) \exp(i\Delta kz), \quad (3)$$

在小信号近似条件下, 假设基频光在非线性介质中传播时波形和能量不变, 即 $E_1(z, t) = E_1(0, \eta_1)$, 则通过变换 $\eta_1 = \eta_2 + \nu z$, $\nu = v_{g_2}^{-1} - v_{g_1}^{-1}$ 可得 $E_1(z, \eta_2) = E_1(0, \eta_2 + \nu z)$, 代入(3)式, 并假设在 $z=0$ 处, $E_2(0, \eta_2) = 0$ 及 $\Delta k = 0$, 直接积分(3)式即可求出二次谐波脉冲波形

$$E_2(L, \eta_2) = K \int_0^L E_1^2(0, \eta_2 + \nu z') dz'. \quad (4)$$

其中 L 为晶体长度。

如果作 $\eta_2 = t - (z/v_{g_2})$, $t' = (z/v_{g_2}) - \nu z'$ 代换, 则

$$E_2(z, t) = K \int_{L/v_{g_2}}^{L/v_{g_1}} \frac{E_1^2(0, t-t')}{\nu} dt'. \quad (5)$$

可得到与文献[5]中用傅里叶变换方法所得的(16)式完全一致。

通常认为由碰撞锁模激光器产生的超短脉冲波形可以用双曲正割函数表示^[7]

$$A_1(0, t) = A_1 \operatorname{sech}(1.76t/\tau), \quad (6)$$

式中 τ 为脉冲半宽度(FWHM)。将此式代入(4)式, 并积分可得

$$\left. \begin{aligned} E_2(L, \eta_2) &= K A_1^2 \frac{\tau}{\nu} \frac{a \operatorname{sh} a}{\operatorname{ch}[(2 \times 1.76\eta_2/\tau) + a] + \operatorname{ch} a}, \\ a &= (1.76\nu L/\tau). \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

由(7)式计算出的在晶体中, 不同距离处 $E_2(z, \eta_2)$ 的波形, 如图1所示。由图1可知, 由于 $v_{g_1} > v_{g_2}$, 二次谐波前沿会得到更大的增益, 从而在整体波形上, 表现出波包峰值的传播速度大于 v_{g_1} 。

由(7)式可以推出二次谐波的半宽度(FWHM)为

$$\tau_{2\omega} = (\tau_{\omega}/2 \times 1.76) \operatorname{ch}^{-1}[(1 + \sqrt{2}) \operatorname{ch} a]. \quad (8)$$

由此也很容易推出二次谐波半宽度窄于基波半宽度的条件。

表1为用该式对文献[8]中BBO晶体内腔倍频实验数据计算所得结果与实测数据的比较。考虑到内腔倍频的影响及对基波脉冲线宽极限近似的误差, 可以看出, 计算与实验数据基本符合。

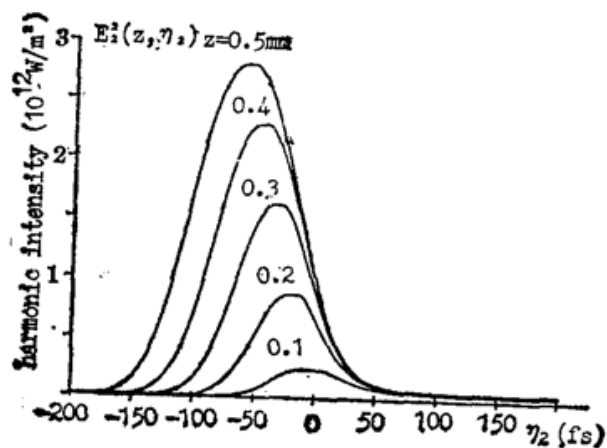


Fig. 1 Development of the second harmonic pulse shapes in LBO crystal

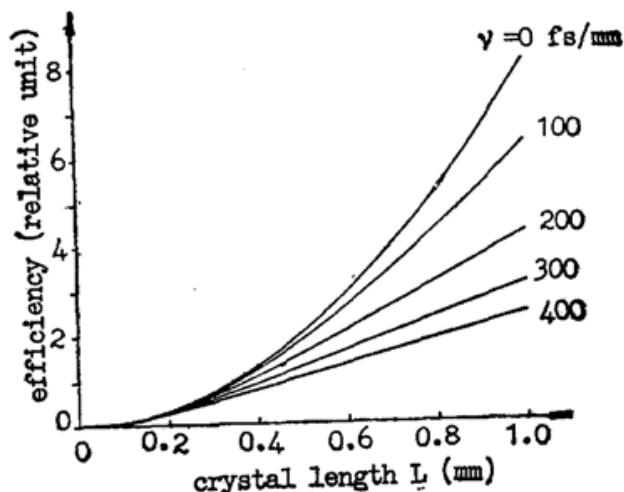


Fig. 2 Effect of group velocity mismatch on the efficiency of fs pulse SHG

Table 1 Comparison between Calculated and Measured Pulse Duration of fs Pulse SHG

Crystal Thickness L (mm)	Fundamental Pulse Duration τ_w (fs)	Measured τ_{2w} (fs)	Calculated τ_{2w} (fs)
0.9	100	400	335
0.15	40	59	51.6
0.055	49	43	36.4

The experimental parameters are derived from ref. [8].

倍频过程的转换效率可由下式求得

$$\epsilon(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} E_2^2(z, \eta_2) d\eta_2}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_1^2(0, \eta_1) d\eta_1} = 2 \left(K A_1 \frac{\tau}{1.76\nu} \right)^2 \frac{a \operatorname{ch} a - \operatorname{sh} a}{\operatorname{sh} a} \quad (9)$$

从(9)式可以分析晶体的群速度色散对超短脉冲倍频的影响, 由图2可看出, 假设晶体的有效非线性系数 K 相同, 则对 ν 值大的晶体, 由于基波脉冲与二次谐波脉冲的相互作用长度较短, 从而倍频效率将比 ν 值小的晶体倍频效率低。

三、一般条件下, 耦合波方程的数值解

在 $\Delta k \neq 0$ 时, 分别将方程(3)、(4)式的实部, 虚部分解, 则可将耦合波方程组化为四个方程

$$\frac{\partial}{\partial z} A_1(z, \eta_1) = K A_1(z, \eta_2) A_2(z, \eta_1) \sin \Phi(z, \eta_1), \quad (10)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \varphi_1(z, \eta_1) = K A_2(z, \eta_1) \cos \Phi(z, \eta_2), \quad (11)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} A_2(z, \eta_2) = -K A_1^2(z, \eta_2) \sin \Phi(z, \eta_2), \quad (12)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \varphi_2(z, \eta_2) = K \frac{A_1^2(z, \eta_2)}{A_2^2(z, \eta_2)} \cos \Phi(z, \eta_2), \quad (13)$$

$$\Phi(z, \eta_j) = 2\varphi_1(z, \eta_j) - \varphi_2(z, \eta_j) + \Delta kz - (\pi/2), \quad (j=1, 2)$$

基波和谐波二个运动坐标系之间的变换可以由下式完成

$$\left. \begin{aligned} A_1(z, \eta_2) &= A_1(z, \eta_1 = \eta_2 + \nu z), & A_2(z, \eta_1) &= A_2(z, \eta_2 = \eta_1 - \nu z), \\ \varphi_1(z, \eta_2) &= \varphi_1(z, \eta_1 = \eta_2 + \nu z), & \varphi_2(z, \eta_1) &= \varphi_2(z, \eta_2 = \eta_1 - \nu z). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

(14)式中尽管 φ_1, φ_2 为 z, η 的快变函数,但是 Φ 却是 z, η 的慢变函数。因此,可以用龙格-库塔方法对方程(10)~(13)式进行数值求解。考虑到由于群速度色散造成的基波和谐波脉冲包络在传输过程中的分离,必须在每一步计算后,用(14)式对 $A_j(z, \eta_j)$ 和 $\varphi_j(z, \eta_j)$ 进行变换。

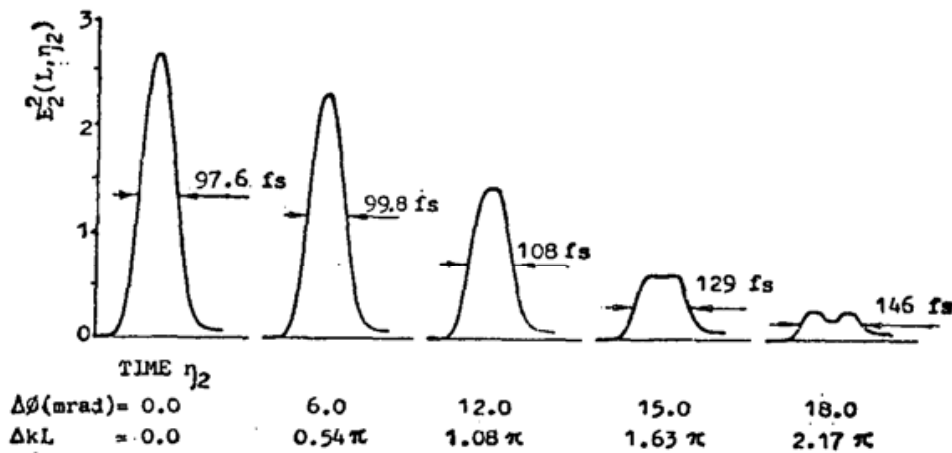


Fig. 3 Numerical solutions to the coupled equations for 80fs (FWHM) ultrashort optical pulse second harmonic generation in 0.5 mm thick LBO crystal

图 3 是对 LBO 晶体计算所得,不同相位失配角 $\Delta\phi$ 时,二次谐波脉冲波形。计算中对晶体中的基波光作了线宽极限脉冲近似和平面波近似。在一类相位匹配的 LBO 晶体中,单频光相位失配接收角可表示为

$$\Delta\phi = \Delta k \frac{\lambda_2 [n_{y(2\omega)}^2 \sin^2 \phi + n_{x(2\omega)}^2 \cos^2 \phi]}{\pi n_{z(\omega)} [n_{x(2\omega)}^2 - n_{y(2\omega)}^2] \sin 2\phi} \quad (15)$$

当 $\Delta kL = 2\pi$ 时, 0.5 mm 厚的 LBO 晶体,对 610.0 nm 的基波单频光 $\Delta\phi = 22$ mrad。

由图 3、图 4 可以看出,在接收角范围内 ($-11 < \Delta\phi < 11$ m rad) 倍频光脉冲宽度变化不大。当相位失配角大于接收角范围时,二次谐波脉冲将很快展宽,并出现脉冲分裂。但是在 $\Delta kL = 2\pi$ 点却不出现倍频效率的零点。在时间域内,这是由于晶体的群速度色散,造成基频脉冲和谐波脉冲在传输过程中发生分离,从而使谐波光不可能完全耦合回基频光中。在频率域中,可以理解为组成基波脉冲的各种光谱成份不可能同时满足 $\Delta kL = 2\pi$ 的条件。这是超短脉冲倍频过程和单频光倍频的不同之处。

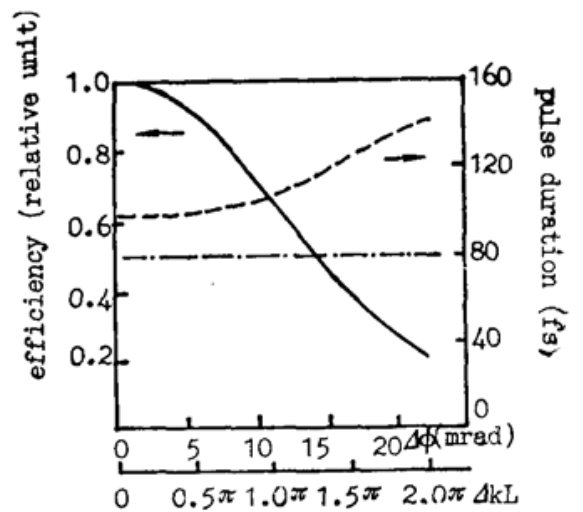


Fig. 4 Intergrated second harmonic conversion efficiency (solid line) and pulse duration (FWHM) (dotted line) versus phase mismatching angle $\Delta\phi$. Fundamental pulse duration after pass through the crystal (dot-dash-line) is also given

四、用 LBO 晶体对 fs 超短脉冲的倍频实验

用 LBO 晶体对碰撞锁模激光器产生的 80 fs 超短脉冲(以一类相位匹配方式)进行了腔外倍频实验,其装置如图 5 所示。碰撞锁模激光器工作频率 85 MHz, 中心波长 610 nm, 光束发散角 1 mrad。用一等效焦距为 15.37 mm 的显微物镜将其聚焦于厚 0.5 mm, 以 $\theta = 90^\circ$, $\phi = 57^\circ$ 切割的 LBO 晶体中。倍频后的紫外光束用一短焦石英透镜进行准直, 用一只 GDB151-R50Q 型光电倍增管, 在光路中插入和不插入紫外滤光片二种状态分别对 305 nm 的谐波和 610 nm 的基波强度进行测试。对光路中各元件的损耗及光电倍增管对不同波段的响应参数进行折算后, 即可求得倍频效率。

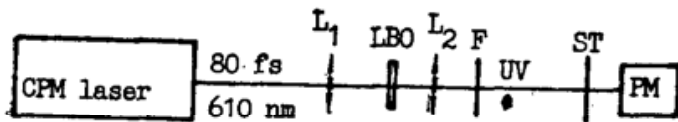


Fig. 5 Sketch of the extra-cavity fs optical pulse second-harmonic-generation in LBO

F—UV filter; ST—small transmission Al film; PM—photomultiplier tube

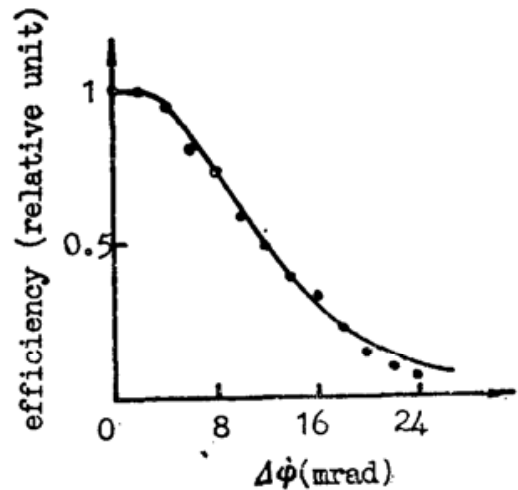


Fig. 6 Dependence of the fs pulse SHG efficiency on the phase mismatching angle $\Delta\phi$

实验测得当基频光平均功率为 5.6 mW 时, 倍频效率可达 4.7%。若以实验参数代入 (7) 式, 在平面波近似下, 算得理论值为 6.1%。考虑到碰撞脉冲锁模激光器输出并非线宽极限脉冲, 因此, 可以认为理论值与实验值基本符合。

此外, 通过调节 ϕ 角, 对倍频效率随相位失配角 $\Delta\phi$ 的变化情况进行了测试。发现测试所得结果与前面的数值计算所得曲线符合得非常好。其结果如图 6 所示。

这一结果说明, 在满足慢变振幅近似下, 用基波和二次谐波运动坐标系变换的方法, 对 fs 超短脉冲非线性光学过程耦合波方程进行分析和求解是一种较理想的方法。它能够比较好地解决在 fs 脉冲的倍频过程中, 非线性晶体群速色散造成的基波光脉冲和谐波光脉冲在传输过程中的分离, 对倍频的影响。

在进行本文工作中, 郭晶华、赵庆春等同志帮助计算了 LBO 晶体的参数, 并联系了加工; 陆培华、肖纲要、李永春、顾圣如等同志在测量仪器上为实验提供了许多方便, 在此, 表示衷心感谢。

参 考 文 献

- [1] S. A. Akhmanov *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1968, **QE-4**, No. 10 (Oct), 598~605.
- [2] Y. N. Karamzin *et al.*; *Sov. J. Quant. Electron.*, 1975, **5**, No. 5 (May), 496~500.
- [3] R. C. Eckardt *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1984, **QE-20**, No. 10 (Oct), 1178~1187.

- [4] J. Comly *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1968, **12**, No. 1 (Jan), 7~9.
[5] W. H. Glenn; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1969, **QE-5**, No. 6 (Jun), 284~290.
[6] J. -M. R. Thomas *et al.*; *Opt. Comm.*, 1972, **4**, No. 5 (Jan), 329~334.
[7] J. C. Diels *et al.*; *J. O. S. A. (B)*, 1985, **2**, No. 4 (Apr), 680~686.
[8] D. C. Edelstein *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1988, **52**, No. 26 (Jun), 2211~2213.
[9] 沈元壤;《非线性光学原理》, (科学出版社, 北京, 1987), 72~77.

Second harmonic generation by femtosecond optical pulses theory and experiment

SHEN JINHUI, HE HUIJUAN, LIU YUPU, ZHANG YINGHUA AND WANG ZHIJIANG
(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

WU BOCHANG

(Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Academia Sinica, Fujian 350002)

(Received 11 January 1991; revised 8 May 1991)

Abstract

The characteristics of second-harmonic-generation from femtosecond optical pulses are discussed. Analytical solutions for the harmonic pulse shape, and conversion efficiency in non-depletion condition are presented. In time domain coupled equations in general condition are solved by numerical method. Phase mismatching influence on the harmonic pulse shape and conversion efficiency is analysed.

Experimental study of extracavity SHG in LBO crystal from 80 fs optical pulses, produced by CPM laser, is reported, The experimental results agree with the theory very well.

Key words: second harmonic generation, femtosecond optical pulse, local time transformation.