

文章编号: 0253-2239(2004)09-1249-4

群速失配对 CsLiB₆O₁₀ 晶体谐波脉冲展宽的影响*

王 丽¹ 韩秀友²

(1 北京工业大学应用物理系, 北京 100022
2 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要: 对超短强激光脉冲在 CsLiB₆O₁₀ 晶体中的群速失配进行了理论分析, 采用傅里叶变换法推导超短脉冲二次谐波的耦合波方程。在 I 类相位匹配下数值计算了脉冲宽度 50 fs 的基波 532 nm, 在 CsLiB₆O₁₀ 晶体长度为 0.5 mm 时产生二次谐波(266 nm)的群速延迟量约 100 fs, 并且随着晶体长度的增长, 二次谐波的脉冲宽度几乎线性展宽。并得到了群速失配量 $\Delta\beta_1^{(2)} = 226.243$ fs/mm, 低阶和二阶群速色散系数分别为 $\beta_2^{(2)} = 210.120$ fs²/mm, $\beta_3^{(2)} = 65.587$ fs³/mm。其结果表明由于群速延迟和群速色散导致了谐波脉宽展宽和形变。

关键词: 非线性光学; 激光超短脉冲; 频率变换; 群速失配; 脉冲展宽; CsLiB₆O₁₀ 晶体
中图分类号: TN248.1 文献标识码: A

Pulse Expanded and Delaying Effect of Second Harmonic Wave in CsLiB₆O₁₀ by Group Velocity Mismatching and Dispersion

Wang Li¹ Han Xiuyou²

(1 Department of Applied Physics, Beijing University of Technology, Beijing 100022
2 Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)
(Received 21 July 2003; revised 6 January 2004)

Abstract: Group velocity mismatching and group velocity dispersion of fs laser pulse in CsLiB₆O₁₀ crystal are analyzed. The coupled equations of ultra-short pulse SHG are deduced by Fourier transform. The second harmonic pumped by 532 nm, 50 fs fundamental wave through CLBO is simulated numerically. The results show that the group velocity delay of second harmonic is about 100 fs at 266 nm through 0.5 mm lengths CsLiB₆O₁₀ and the second harmonic shape is widened linearly with the increase of crystal length. The group velocity mismatching $\Delta\beta_1^{(2)} = 226.243$ fs/mm, and lowness and second order group velocity dispersion $\beta_2^{(2)} = 210.120$ fs²/mm, $\beta_3^{(2)} = 65.587$ fs³/mm are reported for second harmonic on CsLiB₆O₁₀ crystal. The results indicate that group velocity mismatching and group velocity dispersion lead to the widening and deformation of the harmonic.

Key words: nonlinear optics; ultra-short pulse; frequency conversion; group velocity mismatch; pulse-width expanded; CsLiB₆O₁₀ crystal

1 引 言

超短激光脉冲的发展, 为物理学、化学和生物学的实验研究开辟了新的领域, 尤其是飞秒紫外光脉冲更是一种有效的激发和探测光源。目前全固态激光器直接产生深紫外波段的超短激光脉冲成为研究

的热点, 而利用非线性光学频率变换技术是产生高功率深紫外超短激光脉冲的途径之一^[1~3]。非线性光学晶体 CsLiB₆O₁₀ (CLBO) 是 1995 年日本大阪大学、1998 年中国科学院上海光学精密机械研究所相继研制成功的新型紫外晶体。该晶体具有生长周期短、体积大、走离角小、允许角、允许波长、允许温度等允许参量范围宽, 抗损伤阈值高等优点, 为高功率超短脉冲深紫外激光的产生奠定了基础^[4~6]。目前对 CLBO 晶体的研究主要集中在长脉冲、短脉冲或连续波的高次谐波的理论 and 实验方面^[7~9], 而对于超短

* 北京市教委基金(Km200310005022)资助课题。

E-mail: lwang. i@bjut. edu. cn

收稿日期: 2003-07-21; 收到修改稿日期: 2004-01-06

脉冲与 CLBO 晶体的相互作用过程中,群速失配导致的谐波脉冲宽度展宽的理论实验未见报道。本文从理论上对飞秒激光脉冲群速失配影响 CLBO 晶体谐波脉冲宽度的展宽进行数值模拟计算,得到在深紫外波段群速延迟和色散严重,致使随着晶体长度的增长谐波脉宽展宽和形变。这一理论结果对高功率深紫外超短激光器的研制具有实际意义。

2 群速失配

当超短脉冲通过非线性晶体时,其传播常量 k 在中心频率 ω_0 附近展开为^[10]

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left[\frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega} \right]_{\omega_0} \delta\omega + \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2 k(\omega)}{\partial \omega^2} \right]_{\omega_0} \delta\omega^2 + \frac{1}{6} \left[\frac{\partial^3 k(\omega)}{\partial \omega^3} \right]_{\omega_0} \delta\omega^3 + \dots, \quad (1)$$

式中群速延迟系数 β_1 、低阶群速色散系数 $\beta_2^{(2)}$ 、二阶群速色散系数 $\beta_2^{(3)}$ 分别为

$$\beta_1 = \frac{dk}{d\omega} = \frac{1}{c} \left(n + \omega \frac{dn}{d\omega} \right) = \frac{n}{c} - \frac{\lambda}{c} \frac{dn}{d\lambda}, \quad (2)$$

$$\beta_2^{(2)} = \frac{d^2 k}{d\omega^2} = \frac{2}{c} \frac{dn}{d\omega} + \frac{\omega}{c} \frac{d^2 n}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2 n}{d\lambda^2}, \quad (3)$$

$$\beta_2^{(3)} = \frac{d^3 k}{d\omega^3} = -\frac{\lambda^4}{(2\pi)^2 c^3} \left(3 \frac{d^3 n}{d\lambda^3} + \lambda \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \right), \quad (4)$$

光波在介质中传播的群速度为

$$u = (dk/d\omega)^{-1} = 1/\beta_1. \quad (5)$$

定义群速指数^[8]

$$m = \frac{c}{u} = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}. \quad (6)$$

对于 CLBO 晶体,寻常光群速指数 m_o 不依赖于传播方向,而非寻常光群速指数 $m_e(\theta)$ 与传播方向有关

$$m_e(\theta) = (\cos^2 \theta / m_e^2 + \sin^2 \theta / m_o^2)^{-1/2}, \quad (7)$$

式中 m_o 及 m_e 是 $\theta=0^\circ$ 及 $\theta=90^\circ$ 时的主群速指数。

在 20.0 °C 时,CLBO 晶体的色散方程为^[11]

$$n_o^2(\lambda) = 2.2145 + \frac{0.00890}{\lambda^2 - 0.02051} - 0.01413\lambda^2, \quad (8)$$

$$n_e^2(\lambda) = 2.0588 + \frac{0.00866}{\lambda^2 - 0.01202} - 0.00607\lambda^2. \quad (9)$$

联立(6)式~(9)式得出 CLBO 晶体的折射率和群速指数的关系曲线,如图 1 所示。由图 1 可见,群速指数比折射率呈现更强的色散。图 2、图 3、图 4 分别描绘了 CLBO 晶体的群速延迟系数 β_1 、低阶群速色散系数 $\beta_2^{(2)}$ 和二阶群速色散系数 $\beta_2^{(3)}$ 。由这些关系曲线可以看出,在深紫外波段得到群速延迟和色散更

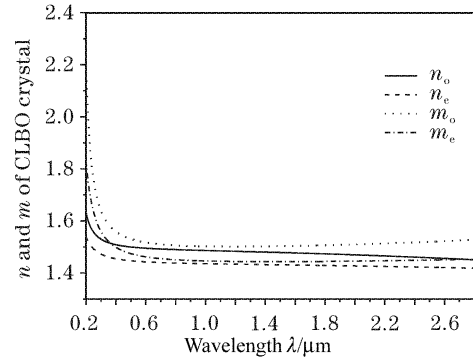


Fig. 1 Index of refraction and group velocity on CLBO

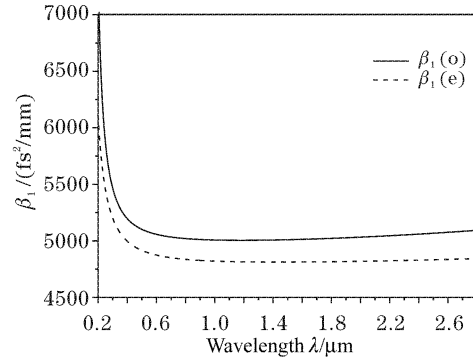


Fig. 2 Group velocity delay coefficient β_1 for CLBO

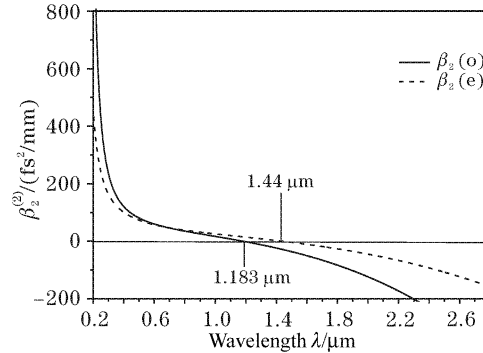


Fig. 3 Group velocity dispersion coefficient β_2 for CLBO

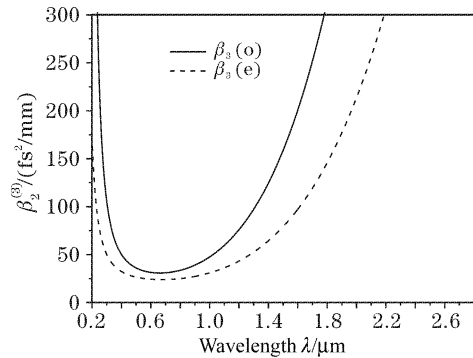


Fig. 4 Group velocity dispersion coefficient β_2 for CLBO 大。图 3 给出了当 $\lambda > 1.44 \mu\text{m}$ (e 光) 及 $\lambda > 1.183 \mu\text{m}$ (o 光) 时, $\beta_2^{(2)}$ 为负值, 从而描绘了色散补偿时, 必须考虑不同波段的色散符号。

3 二次谐波的性质

在考虑群速失配、低阶和二阶群速色散条件下,超短脉冲二次谐波的耦合波方程为^[12~14]

$$\frac{\partial A^{(1)}}{\partial z} - \frac{i}{2}\beta_2^{(1)} \frac{\partial^2 A^{(1)}}{\partial \tau^2} - \frac{1}{6}\beta_3^{(1)} \frac{\partial^3 A^{(1)}}{\partial \tau^3} = -\frac{i8\pi d_{\text{eff}}\omega^{(1)}}{cn^{(1)}} A^{(2)} [A^{(1)}]^* \exp(-i\Delta\beta_0 z), \quad (10)$$

$$\frac{\partial A^{(2)}}{\partial z} + \Delta\beta_1^{(2)} \frac{\partial A^{(2)}}{\partial \tau} - \frac{i}{2}\beta_2^{(2)} \frac{\partial^2 A^{(2)}}{\partial \tau^2} - \frac{1}{6}\beta_3^{(2)} \frac{\partial^3 A^{(2)}}{\partial \tau^3} = -\frac{i8\pi d_{\text{eff}}\omega^{(2)}}{cn^{(2)}} A^{(1)} [A^{(2)}]^* \exp(-i\Delta\beta_0 z), \quad (11)$$

式中 $\Delta\beta_1^{(2)} = \beta_1^{(2)} - \beta_1^{(1)}$ 为群速失配量, β_1 和 β_2 为低阶和二阶色散系数, 相位匹配条件 $\Delta\beta_0 = 2\beta_0^{(1)} - \beta_0^{(2)} = 0$, $A^{(1)}$ 、 $A^{(2)}$ 分别为基波和谐波的场振幅, $n^{(1)}$ 、 $n^{(2)}$ 分别为基波和谐波的折射率, d_{eff} 为有效非线性系数。假设初始基波脉冲为双曲正割函数: $A(\tau)_{z=0} = \frac{A_0}{\exp(-\tau/T_0) + \exp(\tau/T_0)}$, 式中 T_0 为基波的脉冲宽度。对(11)式

中的 τ 作傅里叶变换得到

$$\frac{dA^{(2)}(\omega, z)}{dz} + i\left[\Delta\beta_1^{(2)}\omega + \frac{1}{2}\beta_2^{(2)}\omega^2 + \frac{1}{6}\beta_3^{(2)}\omega^3\right]A^{(2)}(\omega, z) = -\frac{i8\pi d_{\text{eff}}\omega^{(2)}}{cn^{(2)}} \widetilde{F}[A^{(1)}(\tau, 0)]^2, \quad (12)$$

式中

$$\widetilde{F}[A^{(1)}(\tau, 0)]^2 = \frac{x A_0^2}{\exp(x) - \exp(-x)} = xA(\omega), \quad (13)$$

$$(x = \omega\pi T_0/2)$$

令

$$a(\omega) = \frac{\Delta\beta_1^{(2)} 2}{\pi T_0} + \frac{\beta_2^{(2)} 2x}{(\pi T_0)^2} + \frac{1}{3} \frac{\beta_3^{(2)} (2x)^2}{(\pi T_0)^3}, \quad (14)$$

$$b = \frac{-8\pi d_{\text{eff}}\omega^{(2)}}{cn^{(2)}}, \quad (15)$$

则(12)式变为

$$\frac{dA^{(2)}(\omega, z)}{dz} + ia(\omega)xA^{(2)}(\omega, z) = ibxA(\omega). \quad (16)$$

由于 $A^{(2)}(\omega, 0) = 0$, 所以(16)式的解为

$$A^{(2)}(\omega, L) = \frac{bA(\omega)}{a(\omega)} \{1 - \exp[-ia(\omega)xL]\}, \quad (17)$$

其中 L 为二次谐波晶体的长度。谐波脉冲由(17)式的逆傅里叶变换得到

$$A^{(2)}(\tau, L) = \widetilde{F}^{-1}A^{(2)}(\omega, L), \quad (18)$$

假设基波脉冲为高斯型

$$A(\tau)_{z=0} = A_0 \exp(-4t^2/T_0^2), \quad (19)$$

T_0 为基波脉冲宽度。选取基波功率密度 $I_0 = 100 \text{ MW/cm}^2$, 脉冲半峰全宽 $T_{\text{FWHM}} = 50 \text{ fs}$, 则脉冲宽度为 $T_0 = T_{\text{FWHM}}/1.763$ ^[10], 基波中心波长为 532 nm 。对于 CLBO 晶体 I 类倍频的相位匹配角为 61.86° ^[14], $d_{\text{eff}} = d_{36} \sin \theta \sin 2\phi$, 取晶体的切割角 $\phi = 45^\circ$, $d_{36} = 0.95 \text{ pm/V}$ ^[4], 可得 $d_{\text{eff}} = 0.8377 \text{ pm/V}$ 。联立(2)式~(4)式、(8)式和(9)式得到 $\Delta\beta_1^{(2)} = 226.243 \text{ fs/mm}$, $\beta_2^{(2)} = 210.120 \text{ fs}^2/\text{mm}$, $\beta_3^{(3)} = 65.587 \text{ fs}^3/\text{mm}$, $n^{(1)} = n^{(2)} = 1.498$ 。基波入射到

CLBO 晶体长度分别为 0.05 mm 、 0.1 mm 、 0.3 mm 和 0.5 mm , 产生的谐波时域谱如图 5 所示。

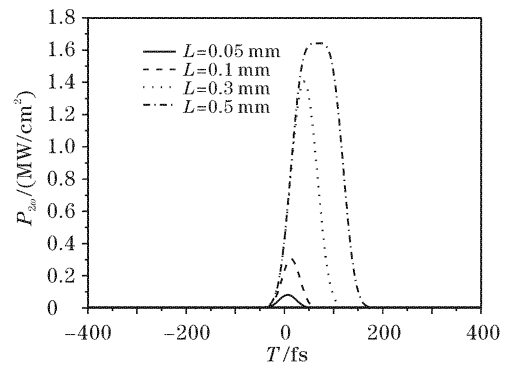


Fig. 5 SHG shaping versus pulse-width at different CLBO lengths

比较图形中的 4 组曲线可以看出,不同晶体长度时产生的谐波时域谱,随着晶体长度增长到 0.5 mm 时,群速延迟量约有 $50 \sim 60 \text{ fs}$,脉宽明显展宽。由于群速失配和群速色散的影响使得谐波的脉冲波形发生了变化,并且谐波的峰值在时间轴上向右偏移。图 6 描绘了二次谐波脉冲宽度随 CLBO

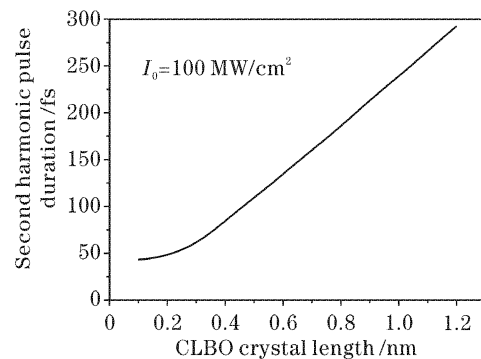


Fig. 6 Curvers of SHG pulse-width versus crystal lengths

晶体长度变化的关系曲线。从图 6 可以看出,随着晶体长度的增长,由于群速色散效应,二次谐波的脉冲宽度几乎线性展宽。

结论 通过傅里叶变换法建立了超短脉冲二次谐波的耦合波方程,并数值模拟计算了基波 532 nm 超短强激光,经过 CsLiB₆O₁₀ 晶体产生谐波 266 nm 的紫外光。得到了紫光波段的群速延迟和群速色散比其他波段大、谐波脉冲宽度随着晶体长度的增大而明显展宽和形变。这一理论结果对高功率深紫外激光器的研制开发具有实际意义。

参 考 文 献

- 1 Bosenberg W R, Cheng L K, Tang C L. Ultraviolet optical parametric oscillation in β -BaB₂O₄. *Appl. Phys. Lett.*, 1989, **54**(1):13~15
- 2 Ringling J, Kittelmann O, Noack F. Tunable femtosecond pulse in the near vacuum ultraviolet generated by frequency conversion of amplified Ti: sapphire laser pulses. *Opt. Lett.*, 1993, **18**(23): 2035~2037
- 3 Tang Yuhui, Han Shensheng, Zhang Changxue *et al.*. Second harmonic emission from fs laser and underdense plasma. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(7): 780~783 (in Chinese)
- 4 Mori Y, Kuroda I, Nakajima S *et al.*. New nonlinear optical crystal: Cesium lithium borate. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(13): 1818~1820
- 5 Fan Yikang, Ye Jianhua. Wideband tuning high efficiency on BBO optical parametric oscillator. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 1991, **11**(5): 396~401 (in Chinese)
- 6 Yap Y K, Haramura S, Taguchi A *et al.*. CsLiB₆O₁₀ crystal for frequency doubling the Nd:YAG laser. *Opt. Commun.*, 1998, **145**: 101~104
- 7 Yasuke M, Kuroda I, Nakajima S *et al.*. Nonlinear optical properties of Cesium lithium borate. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1995, **34**(3A): L296~L298
- 8 Petro V, Noack F, Rotermund F. Sum-frequency generation of femtosecond pulses in CsLiB₆O₁₀ down to 175 nm. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(20): 5076~5078
- 9 Wang Li, Chen Shaohua. Theoretical simulation of effective coefficient and permitted parameters of sum-frequency in CsLiB₆O₁₀. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2002, **22**(12): 1493~1496 (in Chinese)
- 10 Yao Jianquan. *Frequency Conversion of Nonlinear Optics and Laser Tunable Technology* (非线性光学频率变换及激光调谐技术). Beijing: Science Press, 1995. 141~146 (in Chinese)
- 11 Nobuhiro U, Kiyoshi K. Ultraviolet generation tunable to 0.185 μ m in CsLiB₆O₁₀. *Appl. Opt.*, 1997, **36**(27): 6794~6796
- 12 Hiu Hang, Yao Jianquan, Puri A. Second and third harmonic generation in BBO by femtosecond Ti: sapphire laser pulses. *Opt. Commun.*, 1994, **109**(1): 139~144
- 13 Wang Li, Chen Shaohua. Optical properties of the second harmonic generation for nonlinear CsLiB₆O₁₀. *Proc. SPIE*, 2001, **4453**:18~21
- 14 Zhang Xiurong, Zhang Shunxin, Chai Yao. Harmonic generation in new nonlinear crystal CsLiB₆O₁₀. *Chin. J. Lasers* (中国激光), 2000, **A27**(7): 670~672 (in Chinese)