

文章编号: 0253-2239(2007)02-0313-5

# 参变过程中的群速延迟对晶体匹配长度的影响\*

王 丽<sup>1</sup> 韩秀友<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 北京工业大学应用数理学院, 北京 100022  
<sup>2</sup> 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:** 基于能量守恒和三波耦合波方程,建立了超短脉冲在参变过程中二次谐波产生时的 I 类和 II 类相位匹配条件、基波与谐波之间的群速延迟时间、以及群速失配对晶体长度限制的理论基础。以负单轴非线性光学晶体 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> 为例,分析和数值计算了超短脉冲宽度为 100 fs 时,谐波的群速匹配长度随基波波长变化的规律。研究结果表明在 I 类相位匹配条件下,基波波长为 642 nm 时,群速延迟最小,相应的群速匹配晶体长度最长为 19.1 mm;在 II 类相位匹配条件下,基波波长为 767 nm,群速延迟最小,群速匹配长度最长为 0.89 mm。

**关键词:** 非线性光学; 群速延迟; 超短脉冲; 频率变换; 光学参变效应

中图分类号: O437.1 文献标识码: A

## Influence on Crystal Matching Length by Group Velocity Delay in Optical Parametric Process

Wang Li<sup>1</sup> Han Xiuyou<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> College of Applied Sciences, Beijing University of Technology, Beijing 100022  
<sup>2</sup> Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

**Abstract:** The theoretical model of type-I and type-II phase matching conditions for second harmonic generation, group velocity delay of fundamental and second harmonic, and limitation of nonlinear crystal matching length by group velocity mismatch, was obtained by using energy conservation and three-wave coupled equations in optical parametric process of ultra-short pulses. The relation of the group velocity matching length of the harmonic and fundamental wavelength is analyzed by numerical simulation for a negative uniaxial crystal CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> with an 100 fs pulse. The maximum group velocity matching length of nonlinear crystal is 19.1 mm for fundamental wavelength 642 nm in type-I and 0.89 mm for wavelength 767 nm in type-II, which correspond to the minimum group velocity delay time, respectively.

**Key words:** nonlinear optics; group velocity delay; ultra short pulse; frequency conversion; optical parametric effect

## 1 引 言

产生紫外波段光新型非线性光学晶体 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> (CLBO)、KBe<sub>2</sub>BO<sub>3</sub>F<sub>2</sub> (KBBF) 和产生近中红外波段光的 LiNbO<sub>3</sub> (LN)、AgGaSe<sub>2</sub> (AGSe) 和 AgGaS<sub>2</sub> (AGS)<sup>[1~4]</sup> 被广泛应用于激光频率变换。超短脉冲和所需波段激光的产生可以通过光学参变效应的和频、差频和混频方法实现<sup>[5~7]</sup>。但是随着激光超短脉冲宽度的量级不断提高,在参变效应过程中的抽运光(即基频光波)和在非线性光学晶体中谐波之间的耦合过程中,脉冲宽度越窄,基波与谐波

之间的群速延迟和群速失配就越严重<sup>[8]</sup>。因此非线性光学晶体长度的选择对激光频率变换过程中转换效率、允许参量和走离角这些参量均有不同程度的影响<sup>[9]</sup>。对于超短脉冲的频率变换,情况就更为复杂,本文根据能量守恒、动量守恒及三波耦合方程,以负单轴 CLBO 晶体为例,考虑飞秒超短脉冲的群速延迟和群速失配,分析和计算了基波与谐波及基波与基波之间耦合过程中,非线性晶体最佳群速匹配长度的选择和限制。这一理论工作将有利于指导非线性光学频率变换过程中最佳晶体长度、光束质

\* 北京市自然科学基金(4062008)资助课题。

作者简介: 王 丽(1958—),女,教授、博士生导师,从事物理教学、非线性光学频率变换、新型可调谐激光器件、超短激光脉冲和光纤通信的理论和应用研究。E-mail: Lwang.1@bjut.edu.cn

收稿日期: 2006-02-16; 收到修改稿日期: 2006-08-23

量和转换效率的获得。

## 2 超短脉冲二次谐波的群速延迟时间

设  $\omega_1$  和  $\omega_2$  为射入晶体的光波频率,  $\omega_3$  是射出晶体的光波频率, 相应的波矢分别为  $\mathbf{k}_1$ 、 $\mathbf{k}_2$  和  $\mathbf{k}_3$ , 根

据能量守恒和动量守恒, 在三波共线条件下有

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3, \quad (1)$$

当超短脉冲通过非线性晶体时, 其传播常量  $k$  在中心频率  $\omega_0$  附近展开为<sup>[8]</sup>

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

只考虑低阶项, 在(2)式中略去二阶以上的项, 则有

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

将(3)式代入(1)式

$$k(\omega_{10}) + \left[ \frac{\partial k(\omega_1)}{\partial \omega_1} \right]_{\omega_{10}} \delta\omega_1 + k(\omega_{20}) + \left[ \frac{\partial k(\omega_2)}{\partial \omega_2} \right]_{\omega_{20}} \delta\omega_2 = k(\omega_{30}) + \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} \delta\omega_3, \quad (4)$$

即

$$\begin{cases} k(\omega_{10}) + k(\omega_{20}) = k(\omega_{30}), & (5a) \\ \left[ \frac{\partial k(\omega_1)}{\partial \omega_1} \right]_{\omega_{10}} \delta\omega_1 + \left[ \frac{\partial k(\omega_2)}{\partial \omega_2} \right]_{\omega_{20}} \delta\omega_2 = \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} \delta\omega_3, & (5b) \end{cases}$$

由能量守恒得到

$$\delta\omega_1 + \delta\omega_2 = \delta\omega_3, \quad (6)$$

将(6)式代入(5b)式整理得

$$\left\{ \left[ \frac{\partial k(\omega_1)}{\partial \omega_1} \right]_{\omega_{10}} - \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} \right\} \delta\omega_1 = \left\{ \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} - \left[ \frac{\partial k(\omega_2)}{\partial \omega_2} \right]_{\omega_{20}} \right\} \delta\omega_2, \quad (7)$$

(7)式对于任意的  $\delta\omega_1$  和  $\delta\omega_2$  都成立, 则有

$$\left[ \frac{\partial k(\omega_1)}{\partial \omega_1} \right]_{\omega_{10}} - \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} = 0, \quad (8)$$

$$\left[ \frac{\partial k(\omega_2)}{\partial \omega_2} \right]_{\omega_{20}} - \left[ \frac{\partial k(\omega_3)}{\partial \omega_3} \right]_{\omega_{30}} = 0, \quad (9)$$

在二次谐波(SHG)情况下,  $\omega_{10} = \omega_{20} = \omega$ , 则有  $\omega_{30} = 2\omega$ , 对于负单轴晶体, I 类相位匹配条件时, 二次谐波应满足的相位匹配和群速匹配条件分别为

$$k^e(2\omega) - 2k^o(\omega) = 0, \quad \text{或} \quad n^e(2\omega, \theta) = n^o(\omega), \quad (10a)$$

$$\left[ \frac{\partial k^o(\omega)}{\partial \omega} \right]_{\omega} - \left[ \frac{\partial k^e(2\omega)}{\partial \omega} \right]_{2\omega} = 0, \quad \text{或} \quad \frac{1}{u^o(\omega)} = \frac{1}{u^e(2\omega, \theta)}, \quad (10b)$$

其中  $n$  为折射率,  $u$  为群速度。在 II 类条件下, 应满足的相位匹配和群速匹配条件分别为

$$k_1^i(\omega) + k_2^i(\omega) = k_3^e(2\omega), \quad \text{或} \quad n^o(\omega) + n^e(\omega, \theta) = 2n^e(2\omega, \theta), \quad (11a)$$

$$\left[ \frac{\partial k^o(\omega)}{\partial \omega} \right]_{\omega} - \left[ \frac{\partial k^e(2\omega)}{\partial \omega} \right]_{2\omega} = 0, \quad \text{或} \quad \frac{1}{u^o(\omega)} = \frac{1}{u^e(2\omega, \theta)}, \quad (11b)$$

$$\left[ \frac{\partial k^e(\omega)}{\partial \omega} \right]_{\omega} - \left[ \frac{\partial k^e(2\omega)}{\partial \omega} \right]_{2\omega} = 0, \quad \text{或} \quad \frac{1}{u^e(\omega, \theta)} = \frac{1}{u^e(2\omega, \theta)}, \quad (11c)$$

与长脉冲及连续波不同, 超短脉冲本身就有很宽的谱宽度, 要在一个宽的谱线范围内同时满足上述相位匹配和群速匹配是不容易的, 如果只满足相位匹配条件, 在倍频过程中必会造成时间上的延迟, 还会造成二次谐波脉冲宽度的加宽。

超短脉冲通过非线性晶体时, 由于群速的不同

造成基波及谐波在时间上的群速延迟。

$$\Delta u^{-1} = u_{\omega}^{-1} - u_{2\omega}^{-1} = \beta_1(\omega) - \beta_1(2\omega), \quad (12)$$

$\Delta u$  为表征时间对于光场的一阶作用,  $\beta_1 = \frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega}$  为群速延迟系数。

对于 I 类(o+o-e)匹配

$$\Delta u^{-1}(\text{I}) = u^{-1}(\omega(\text{o})) - u_{2\omega}^{-1}(\text{e}), \quad (13)$$

对于 II (1)类(o+e-e)

$$\Delta u^{-1}(\text{II}) = u_{\omega}^{-1}(\text{o}) - u_{2\omega}^{-1}(\text{e}), \quad (14a)$$

对于 II (2)类(e+o-e)

$$\Delta u^{-1}(\text{II}) = u_{\omega}^{-1}(\text{e}) - u_{2\omega}^{-1}(\text{e}), \quad (14b)$$

对于 II (3)类代表基波间的时间延迟

$$\Delta u^{-1}(\text{II}) = u_{\omega}^{-1}(\text{o}) - u_{\omega}^{-1}(\text{e}), \quad (14c)$$

式中  $u_{\omega}(\text{e})$  及  $u_{2\omega}(\text{e})$  是  $\theta$  的函数。当超短脉冲经过长度为  $L$  的非线性晶体后,由于群速延迟造成的基波与谐波之间的延迟时间为

$$T_D = L\Delta u^{-1}, \quad (15)$$

由(13)式和(14)式可知,I类和II(2)类是具有代表性的匹配形式,本文针对不同长度的 CLBO 晶体,联立方程(13)式、(14b)式、(15)式和群速指数<sup>[8]</sup>,数值计算了二次谐波的群速延迟时间,如图 1 和图 2 所示。

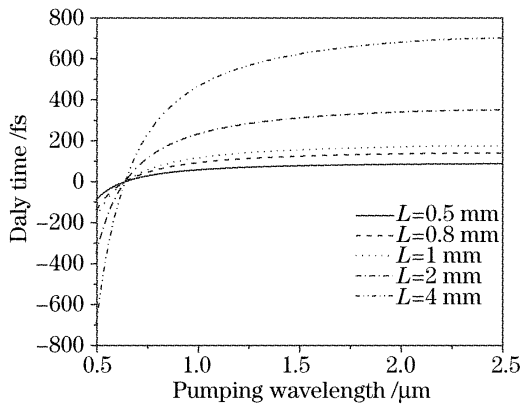


图 1 超短二次谐波脉冲的延迟时间与基波光长的关系 (I类匹配,不同晶体长度)

Fig.1 Relation curves of pulse delay time and fundamental wavelength for SHG (in ultrashort pulse, type-I, different crystal lengths)

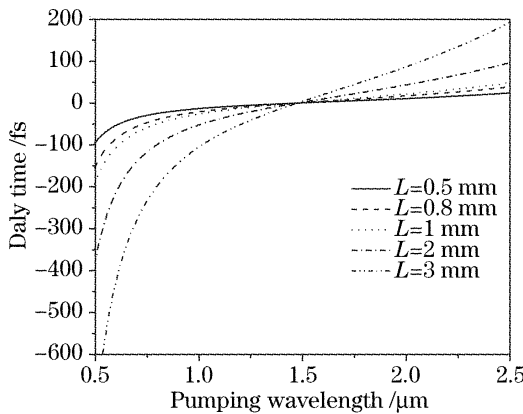


图 2 超短脉冲 II 类二次谐波的延迟时间与基波光长的关系(不同晶体长度)

Fig.2 Delay time versus fundamental wavelength on SHG (in ultrashort pulse, type-II (2), different crystal lengths)

由图 1 和图 2 可以得知,当基波波长分别为 642 nm 和 1470 nm 时,不同晶体长度对应的延迟时间最小。在具体的实验过程中,应根据所选择的相位匹配方式和基波波长和谐波的输出波长,合理选择最佳晶体长度,以减小基波与谐波、e 光和 o 光之间的延迟时间。

### 3 群速失配对晶体长度的限制

#### 3.1 CLBO 晶体的最佳群速匹配长度

晶体长度对频率变换过程的影响极大,除了直接影响转换效率外,还通过允许角、允许波长、允许温度及走离角施加影响<sup>[10]</sup>。对于超短激光脉冲,为了保持谐波脉冲宽度短于基波脉冲宽度,非线性晶体的长度  $L$  应短于由群速度决定的长度  $L_{\text{gvm}}$

$$L_{\text{gvm}} = \tau_p |\Delta u| = \tau_p / \Delta \beta_1, \quad (16)$$

式中  $\tau_p$  为基波脉冲宽度,通常用群速匹配长度  $L_{\text{gvm}}$  来衡量群速失配的影响。

对于 I 类二次谐波有

$$L_{\text{gvm}}(\text{I}) = \frac{\tau_p}{\Delta \beta_1} = \frac{\tau_p}{|\beta_1(\omega) - \beta_1(2\omega)|}, \quad (17)$$

对于 II 类二次谐波有

$$L_{\text{gvm}}[\text{II}(1)] = \frac{\tau_p}{\Delta \beta_1} = \frac{\tau_p}{|\beta_1(\omega) - \beta_1(2\omega)|}, \quad (18a)$$

$$L_{\text{gvm}}[\text{II}(2)] = \frac{\tau_p}{\Delta \beta_1} = \frac{\tau_p}{|\beta_1^e(\omega) - \beta_1^e(2\omega)|}, \quad (18b)$$

$$L_{\text{gvm}}[\text{II}(3)] = \frac{\tau_p}{\Delta \beta_1} = \frac{\tau_p}{|\beta_1^o(\omega) - \beta_1^o(\omega)|}, \quad (18c)$$

$$L_{\text{gvm}}(\text{II}) = \min\{L_{\text{gvm}}[\text{II}(1)], L_{\text{gvm}}[\text{II}(2)], L_{\text{gvm}}[\text{II}(3)]\}, \quad (18d)$$

在(18)式中,  $\min$  表示取最小,  $L_{\text{gvm}}[\text{II}(1)]$ 、 $L_{\text{gvm}}[\text{II}(2)]$  和  $L_{\text{gvm}}[\text{II}(3)]$ 、分别代表基波为 o 光和 e 光时与二次谐波为 e 光,及基波为 e 光和 o 光时与二次谐波为 e 光,基波为 o 光和 e 光时,所决定的晶体群速匹配长度。由于基波 o 光、基波 e 光与 e 光的二次谐波在晶体中以不同的群速度传播,因此彼此之间存在群速延迟和最佳的群速匹配长度。在 I 类和 II 类匹配条件下,基波脉冲宽度分别为 10 fs, 20 fs, 50 fs 和 100 fs 的情况下,CLBO 晶体中的  $L_{\text{gvm}}$  随基波光长的变化规律,如图 3 和图 4 所示。由图 3 可知,在 I 类匹配下,基波波长为 642 nm 时,群速延迟最小,相应的晶体长度  $L_{\text{gvm}}$  最长,有  $L_{\text{gvm}}(10 \text{ fs})$  为 3.8 mm,  $L_{\text{gvm}}(20 \text{ fs})$  为 7.6 mm,  $L_{\text{gvm}}(50 \text{ fs})$  为 19.1 mm,  $L_{\text{gvm}}(100 \text{ fs})$  为 38.2 mm。在其波长两侧,随着波长的偏离,群速延迟迅速增大,  $L_{\text{gvm}}$  迅速减小。如在基波波长为

800 nm处,  $L_{\text{gvm}}$  (10 fs) 为 0.14 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (20 fs) 为 0.27 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (50 fs) 为 0.67 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (100 fs) 为 1.35 mm。由图 4 可知, 在 II 类匹配(o+e $\rightarrow$ e)下, 基波波长为 767 nm 时, 群速延迟最小, 相应的晶体长度为  $L_{\text{gvm}}$  (10 fs) 为 0.19 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (20 fs) 为 0.36 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (50 fs) 为 0.89 mm,  $L_{\text{gvm}}$  (100 fs) 为 1.79 mm。由此得出脉冲宽度越窄, 群速延迟时间越大, 晶体的群速匹配长度越短。

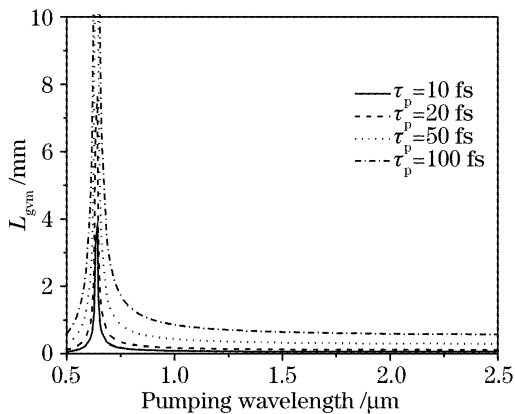


图 3 超短脉冲 I 类倍频 CLBO 晶体的  $L_{\text{gvm}}$  随基波波长变化的关系曲线

Fig. 3 Group velocity matching length  $L_{\text{gvm}}$  versus fundamental wavelength for SHG (in type-I, ultrashort pulse, CLBO crystal)

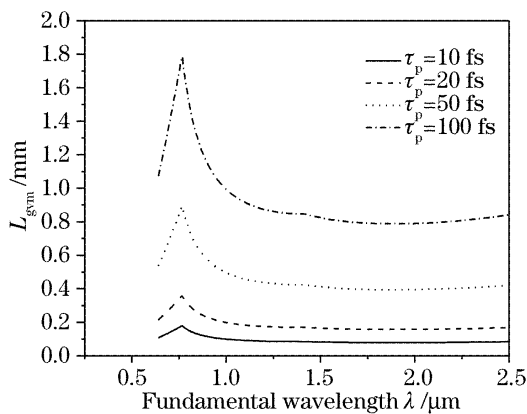


图 4 超短脉冲 II 类倍频 CLBO 晶体的  $L_{\text{gvm}}$  随基波波长变化的关系曲线

Fig. 4 Group velocity matching length  $L_{\text{gvm}}$  versus fundamental wavelength for SHG (in type-II, ultrashort pulse, CLBO crystal)

对于基波脉冲宽度为 100 fs 时, I 类和 II 类相位匹配情况下的 BBO 晶体和 CLBO 晶体的  $L_{\text{gvm}}$  随基波波长变化曲线, 如图 5 和图 6 所示。由图 5 可知, 在 I 类相位匹配条件下, 在大于 585 nm 波段时, CLBO 晶体的  $L_{\text{gvm}}$  要大于 BBO 晶体, 即在此波段内, 相同长度的 BBO 和 CLBO 晶体用于超短脉冲的二次谐波产生时, CLBO 晶体中的群速延迟要小

于 BBO 晶体中的群速延迟, 由此对应的转换效率也高于 BBO 晶体。由图 6 可知, 在 500~2500 nm 整个波段, CLBO 晶体的  $L_{\text{gvm}}$  总大于 BBO 晶体的, 因此, 在 II 类相位匹配条件下, 对于二次谐波的产生, CLBO 晶体的延迟时间优于 BBO 晶体。

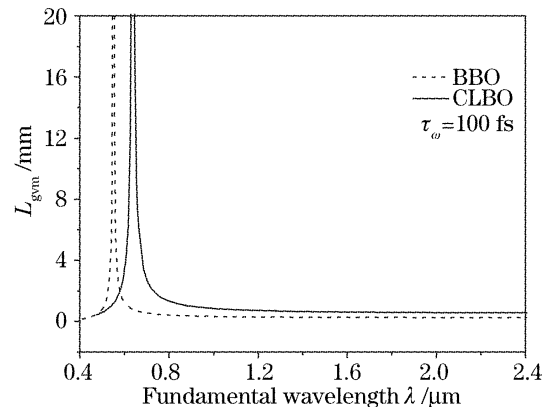


图 5 BBO 和 CLBO 的  $L_{\text{gvm}}$  随基波波长的曲线比较 (I 类匹配, 超短脉冲, 二次谐波)

Fig. 5 Comparison of  $L_{\text{gvm}}$  with fundamental wavelength in CLBO and BBO (in type-I, SHG, ultrashort pulse)

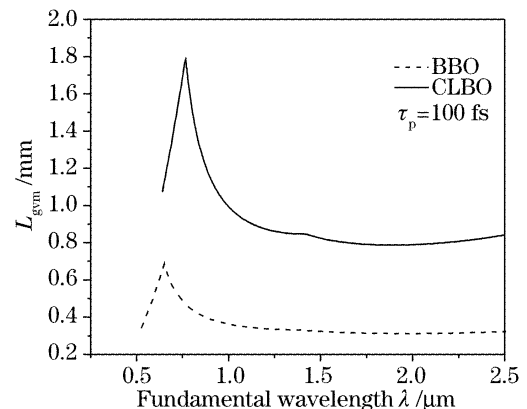


图 6 BBO 和 CLBO 的  $L_{\text{gvm}}$  随基波波长的变化曲线比较 (II 类匹配, 超短脉冲, 二次谐波)

Fig. 6 Comparison of  $L_{\text{gvm}}$  with fundamental wavelength in CLBO and BBO (in type-II, SHG, ultrashort pulse)

## 4 结 论

超短激光脉冲光参变器件的研发过程中, 离不开对非线性光学晶体材料的选取、长度和相位匹配方式的设计等。特别是随着应用领域的需求, 要求的脉冲宽度越来越窄, 激光强度越来越高, 当这样的激光脉冲与物质相互作用过程中, 就会在理论和实验研究上出现新的课题。利用负单轴非线性晶体实现激光频率变换技术, 已经成为众多波段实现的手段。在光参变过程中, 超短激光脉冲在 I 类和 II 类

相位匹配条件下的群速延迟和相位失配,使得晶体材料的群速度匹配长度受到影响和限制。在飞秒量级,二次谐波参变过程中,在波长小于754 nm波段的 I 类匹配下的  $L_{\text{gvm}}$  要好于 II 类相位匹配,在 754 nm 以后的波段,II 类相位匹配时的  $L_{\text{gvm}}$  要明显好于 I 类相位匹配;得到了在不同相位匹配条件下的最佳群速度匹配长度。由此可见,在实际的二次谐波过程中可根据基波的不同波段选择合适的相位匹配类型和晶体长度。

### 参 考 文 献

- 1 Yusuke Mori, Ikuo Kuroda, Satoshi Nakajima *et al.*. New nonlinear optical crystal; cesium lithium borate[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(13): 1818~1820
- 2 Zhang Xiurong, Zhang Shunxing, Chai Yao. A second harmonic generation of new nonlinear optical crystal-CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>[J]. *Chin. J. Lasers*, 2000, **A27**(7): 669~672 (in Chinese)  
张秀荣,张顺兴,柴 耀. 新型非线性晶体—CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>的倍频效应[J]. *中国激光*, 2000, **A27**(7): 669~672
- 3 Chuangtian Chen, Junhua Lu, T. Togashi *et al.*. Second-harmonic generation from a KBe<sub>2</sub>BO<sub>3</sub>F<sub>2</sub> crystal in the deep ultraviolet[J]. *Opt. Lett.*, 2002, **27**(8): 637~639
- 4 Wang Mingwei, Xing Qirong, Wang Qingyue *et al.*. Experimental study on a CW Nd:YAG laser Q-switched by Cr<sup>4+</sup>:YAG absorber[J]. *Chin. J. Lasers*, 1998, **A25**(10): 872~876 (in Chinese)  
王明伟,邢岐荣,王清月 等. CW Nd:YAG 激光器中 Cr<sup>4+</sup>:YAG 被动调 Q 的实验研究[J]. *中国激光*, 1998, **A25**(10): 872~876
- 5 Valentin Petrov, Frank Noack, Fabian Rotermund *et al.*. Sum-frequency generation of femtosecond pulses in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> down to 175 nm[J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(27): 5076~5079
- 6 Jie Song, Cheng Li, Nam Seong Kim *et al.*. Passively Q-switched diode-pumped continuous-wave Nd:YAG-Cr<sup>4+</sup>:YAG laser with high peak power and high pulse energy[J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(27): 4954~4958
- 7 C. Czeranowsky, E. Heumann, G. Huber. All-solid-state continuous-wave frequency-doubled Nd:YAG-BiBO laser with 2.8 W output power at 473 nm[J]. *Opt. Lett.*, 2003, **28**(6): 432~434
- 8 Wang Li, Han Yiyou. Pulse expanded and delaying effect of second harmonic wave in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> by group velocity mismatching and dispersion [J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(9): 1249~1252 (in Chinese)  
王 丽,韩秀友. 群速失配对 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> 晶体谐波脉冲展宽的影响[J]. *光学学报*, 2004, **24**(9): 1249~1252
- 9 Wang Li, Chen Shaohua. Theoretical simulation of the effective coefficient and permitted parameters of sum-frequency in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub>[J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(12): 1493~1496 (in Chinese)  
王 丽,陈少华. 紫外晶体 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> 混频允许参量范围的数值分析[J]. *光学学报*, 2002, **22**(12): 1493~1496
- 10 Wang Li, Chen Shaohua. Numerical analysis of conversion efficiency of second harmonic generation on crystal CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> [J]. *JETP Letters*, 2002, **75**(10): 513~516