

飞秒激光在 BBO 晶体中倍频效率的数值计算^{*}

吕铁铮¹⁾ 王 韬²⁾ 钱列加²⁾ 鲁 欣¹⁾ 魏志义¹⁾ 张 杰¹⁾

¹⁾ 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080

²⁾ 复旦大学先进光子学材料与器件国家重点实验室, 上海 200433

(2001 年 5 月 15 日收到, 2001 年 11 月 13 日收到修改稿)

采用分步傅里叶法对飞秒激光在 BBO 晶体中倍频过程的效率进行了数值计算, 分析表明这种方法既避免了其他数学方法的繁琐, 又直观地展现了倍频过程的物理本质. 针对有关实验条件, 计算了脉宽为 100fs 的激光脉冲通过 2mm 长、I 类相位匹配的 BBO 晶体的倍频效率, 计算结果与实验上对同样晶体倍频效率的测量是一致的.

关键词: 飞秒激光, 倍频

PACC: 4260, 4255B, 4250

1. 引 言

固体锁模激光技术在过去十年时间里的飞速发展, 使飞秒激光已成为人们开展科学研究最常用的工具之一. 目前人们不仅通过掺钛蓝宝石激光可以直接产生小于 5fs 的激光脉冲^[1], 而且也在 Cr: forsterite^[2], Cr: YAG^[3] 等一系列宽调谐激光晶体中实现了飞秒锁模运转. 但是, 上述激光的工作波长均运行在近红外、红外波段, 不能满足需要采用更短波长飞秒脉冲进行研究的应用要求. 实际上由于倍频后光子能量的增大, 其可以更广泛的应用到超快研究中, 因此采用非线性晶体进行飞秒脉冲的频率转换, 得到不同波长的飞秒激光是人们感兴趣的内容.

目前获得短波长飞秒脉冲最直接的方法是倍频自锁模钛宝石激光. 如果是腔内倍频, 由于腔内具有相对高的脉冲能量, 因此为了有效的抑制脉冲展宽, 通常采用极薄的非线性晶体; 但对于腔外倍频, 由于基波功率低, 则往往需要一定厚度的晶体才能得到理想的谐波转换效率. 我们采用 2mm 的 BBO (b-barium borate, 偏硼酸钡) 晶体, 腔外倍频掺钛蓝宝石激光获得了高达 60% 的峰值转换效率^[4]. 与普通激光倍频过程不同, 超短脉冲由于具有较宽的光谱宽度, 因此无论哪种倍频方式, 倍频晶体除要求相位匹配外, 还应该满足宽带接收要求, 即群速匹配, 此外脉

冲的走离角、脉宽及带宽等因素也是影响倍频转换效率的重要方面. 尽管目前人们对稳态激光的频率变换效率已有了比较成熟的研究^[5], 但由于超短脉冲上述问题的复杂性, 采用传统非线性光学的方法在理论分析上仍有一定的困难^[6]. 本文我们通过对飞秒脉冲在 BBO 晶体上倍频过程的分析, 采用分步傅里叶法 (split Fourier method) 进行了倍频效率的数值计算. 这种方法不仅避免了其他数学方法的繁琐, 而且也直观地展现了倍频过程的物理本质. 我们还针对有关实验条件, 计算了脉宽为 100fs 的激光脉冲通过 2mm 长、I 类相位匹配的 BBO 晶体的倍频效率, 计算结果与实验上对同样晶体倍频效率的测量是一致的.

2. 飞秒脉冲激光倍频的原理及过程分析

对于脉冲宽度较宽的长脉冲而言, 倍频过程可忽略基频光和倍频光群速度的差异, 作为稳态问题来解决, 而对于超短脉冲, 当通过对于非线性晶体时, 基波和谐波之间的群速度差异以将严重影响倍频脉冲的形状和效率, 所以飞秒脉冲的倍频要满足位相匹配和群速匹配. 即有:

$$k(2\omega) = 2k(\omega), \quad (1)$$

$$(dk/d\omega)_{2\omega} = (dk/d\omega)_{\omega}, \quad (2)$$

其中 ω 为角频率, k 为波矢量, 并有 $k_i = n_i\omega/c$. 一

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 19825110, 69878032)和 863-410 激光高技术主题资助的课题.

一般而言,三波相互作用的相位匹配有两种类型:入射基频光具有相同偏振方向,则为 I 类,反之而为 II 类匹配.考虑最常用的 BBO 晶体,由于属于是负单轴结构,相位匹配采用 I 类匹配方式,即要求满足

$$0 + 0 \rightarrow e, n_o(\omega) = n_e(2\omega, \theta). \quad (3)$$

n_o, n_e 分别表示寻常光和异常光的折射率,可以由 Sellmeier 公式推出,

$$\begin{aligned} n_e^2 &= 2.3753 + 0.01224(\lambda^2 - 0.01667) \\ &\quad - 0.01516\lambda^2, \\ n_o^2 &= 2.7359 + 0.01878(\lambda^2 - 0.01822) \\ &\quad - 0.01354\lambda^2. \end{aligned} \quad (4)$$

其中波长以 μm 为单位.结合折射率椭球方程

$$n_e(\theta) = n_o n_e / \sqrt{n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta},$$

可得出相位匹配角关系式为

$$\sin^2 \theta_m = \frac{n_e^2(2\omega) [n_o^2(2\omega) - n_o^2(\omega)]}{n_o^2(\omega) [n_e^2(2\omega) - n_e^2(\omega)]}. \quad (5)$$

同时有效非线性系数为

$$d_{\text{eff}}(\theta, \phi) = (d_{11} \cos 3\phi - d_{22} \cos 3\phi) \cos \theta + d_{31} \sin \theta. \quad (6)$$

一般而言, $d_{11} = 1.6 \times 10^{-12} \text{ m/V}$, 而 d_{22}, d_{31} 相比小两个数量级,所以只需知道了相位匹配角和切割角后就可以得出特定的 BBO 晶体的 $d_{\text{eff}}(\theta, \phi)$. 此外晶体的长度对频率变换影响较大,但过长的晶体不可避免的带来了群速失配,相对而言,腔外倍频由于转换效率低,故多选相对较厚的晶体.

事实上,在超短脉冲很宽的谱线内,相位匹配和群速匹配无法同时满足,定义群速延迟来描述脉冲在晶体中的展宽

$$\nabla u^{-1} = u_{\omega}^{-1} - u_{2\omega}^{-1} = \beta_1(\omega) - \beta_2(\omega). \quad (7)$$

∇u 表征了时间对光场的一阶作用,通常定义 $L_{\text{gvm}} = \tau_p / \nabla u$ 来衡量群速度失配的影响,其中, τ_p 为基频激光脉冲宽度.对于我们实验所采用的飞秒激光器,激光脉冲宽度约为 100fs,而 BBO 晶体的群速度延迟约为 $\nabla u = 200\text{fs/mm}$,可以得到 $L_{\text{gvm}} = 0.5\text{mm}$.通常,对于飞秒脉冲,为使谐波脉冲尽可能不被展宽,倍频晶体的长度 z 应短于 L_{gvm} .

严格地讲,在考虑了时间对光场的一阶作用后,还需要考虑高阶色散项.可以推出二阶,三阶等高阶色散表达式为

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \phi}{d\omega^2} &= (2Ldn/d\omega + \omega Ld^2 n/d\omega^2) / c, \\ \frac{d^3 \phi}{d\omega^3} &= (3Ld^2 n/d\omega^2 + \omega Ld^3 n/d\omega^3) / c, \end{aligned} \quad (8)$$

其中 c 为光速,上述 $d^2 \phi/d\omega^2$ 即为群速度色散(GVD),它使得基波和二次谐波在 BBO 晶体内传播时各自展宽并分开.但是,群速度延迟的作用是一阶效应,其影响是主要的,只有当一阶作用为零时,才需要考虑高阶项的作用.而对于我们实验采用 BBO 晶体和 800mm 的基频激光波长,基频光和倍频光的色散长度 $L_{\text{dis}}(\omega) \gg L_{\text{cry}}, L_{\text{dis}}(2\omega) \gg L_{\text{cry}}$,所以群速度延迟的影响才是主要因素.

3. 数值求解方法

通过以上分析可以得出:首先,群速度延迟的作用是主要的,所以 $\partial A/\partial t$ 等含时项就不可忽略,而高阶色散的作用可以忽略;其次,还应该考虑空间效应的作用,这种空间效应的影响包括光束衍射效应、空间走离效应和调整误差等因素的影响.这些空间作用是可以和时间作用相类比的,但当同时考虑空间和时间效应的影响时,计算工作量将相当大.所以,为了计算方便,同时又物理意义明确,我们将空间作用的影响归于位相失配 Δk , 计算采用的耦合波方程为

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} = iK_1 A_2 A_1^* \exp(-i\Delta k z), \quad (9)$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} + \frac{1}{\nabla u} \frac{\partial A_2}{\partial t} = iK_2 A_1 A_1^* \exp(i\Delta k z), \quad (10)$$

其中 $A_i(z, t)$ 为脉冲的电场表达式 ($i = 1, 2$, 对应基波和二次谐波), z 为脉冲在 BBO 晶体的传输距离.对于上述方程,难以得到直接的解析解,在这里采用一种物理过程比较明确的数值求解法,称为分布傅里叶法,为方便计,将改写为如下形式:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\widehat{D} + \widehat{N})A, \quad (11)$$

式中 \widehat{D} 为微分算符,它表示光波传输中的时间作用,而 \widehat{N} 为耦合算符,表示非线性相互作用的过程,分步傅里叶法就是假设在传输过程中,光场每通过一小段距离,时间相关作用和非线性过程是分别作用的,即可通过分别计算时间作用和非线性相互作用得到近似结果,所以其数学表示式为

$$A(z+h, T) \approx \exp(h\widehat{D}) \exp(h\widehat{N}) A(z, T). \quad (12)$$

$\exp(h\widehat{D})$ 操作傅里叶变换到频域进行,并且显然 \widehat{D} , \widehat{N} 算符非对易,故有 Baker-Hausdorff 公式,可以确定

主要误差项来自 $(1/2h) [\widehat{D}, \widehat{N}]$, 即该算法精确到分步步长 h 的二阶项.

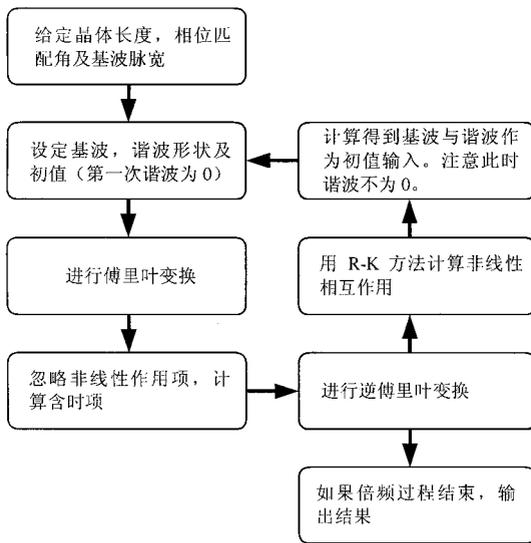


图 1 分步傅里叶法计算倍频过程效率的流程图

以上述分析为基础进行编程计算, 图 1 为我们计算算法的流程图. 为了使计算对激光实验具有更大的意义, 我们利用我们实验室飞秒激光器的典型参数(脉宽约 100fs, 中心波长为 800nm, 平均功率为 1.7W)对倍频转换效率进行了计算. 图 2 为利用上述数据计算所得的通过 BBO 晶体倍频转换效率, 其中的实线表示在实际工作状态下, 考虑了实际的群速度延迟和位相失配及损耗等的条件下, 点线则表示在位相匹配但仍存在群速度延迟的条件下得到的结果, 虚线则表示在理想条件下, 即位相匹配且无群速度延迟的条件的计算结果. 计算结果表明: 首先, 群速度延迟总体将会导致倍频效率的降低, 对于长度为 2mm 的 BBO 倍频晶体来说, 群速度延迟的影响并不非常显著; 其次, 空间效应的影响通过位相失配量 Δk 来表示, 在存在空间效应时间样会进一步降低倍频的效率, 这和时间作用的影响是相当的; 此外, 计算得到的倍频转换效率约为 $\eta = 60\%$, 和实验所得到的结果相符, 这也可以间接得到位相失配量 Δk 的大小.

图 3 中的实线是脉宽为 100fs 的激光脉冲倍频后的脉冲形状. 其中的点线表示输入脉冲的形状, 虚线则为在小信号且存在群速度延迟条件下的计算结果. 可以看出, 对于长度为 2mm 晶体, 由于群速度延迟的存在, 激光脉冲的形状将直接影响输出脉冲的宽度, 在小信号条件下, 高斯型的脉冲输入将逐渐展宽成方型脉冲, 而对于工作在高强度的飞秒脉冲, 脉

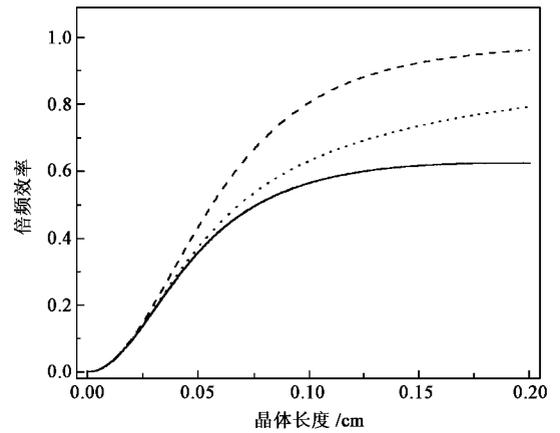


图 2 100fs 激光脉冲 BBO 晶体中倍频转换效率

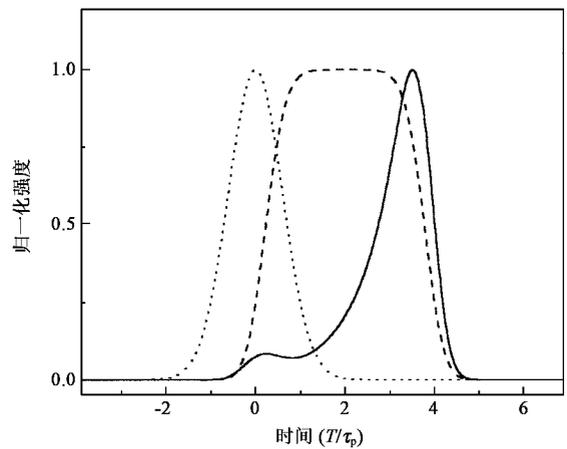


图 3 100fs 激光脉冲 BBO 晶体倍频后脉冲形状

冲的宽度和形状也将变化, 但并不非常显著. 上述计算结果表明, 对于飞秒脉冲倍频, 其强烈的非线性过程使得倍频主要发生在晶体中初始很短的长度内, 所以群速度延迟的影响相对于小信号倍频过程将减弱. 通常在选择晶体长度时要求满足 $L_{\text{cry}} \sim g_{\text{vm}}$, 只是对于小信号激光脉冲倍频而言, 而对于高强度下的倍频, 较长的晶体长度也是适当的, 这在以前的文献中是很少认识到这一点的. 这也再次证实我们 2mm 的晶体长度的选择是恰当的.

4. 结 论

分步傅里叶法是一种广泛应用于非线性光学中的方法, 将它用于飞秒激光倍频的瞬态耦合方程中, 在误差可以接受的情况下, 既避免了其他方法的繁琐, 又揭示了飞秒倍频过程的物理内涵. 还值得指出, 分步傅里叶法也可以用于研究大气、光纤等各种介质中飞秒脉冲传输问题.

- [1] Ell R , Morgner U , Krüner F X , Fujimoto J G , Ippen E P , Scheuer V , Angelow G , Tschudi T , Lederer M J , Boiko A and Luther-Davies B 2001 *Opt. Lett.* **26** 373
- [2] Seas A , Petricevic V and Alfano R R 1993 *Opt. Lett.* **18** 891
- [3] Sennaroglu A , Pollock C R and Nathel H 1994 *Opt. Lett.* **19** 390
- [4] Xia J F , Wei Z Y and Zhang J 2000 *Optics & Laser Technology* **32** 241
- [5] Yao J Q 1995 *Nonlinear Optical Frequency Conversion and Tunable Lasers* (Beijing Science Press) 姚建铨 1995 非线性光学频率变换及激光调谐技术(北京 科学出版社)
- [6] Yao J Q , Liu H and Ashok P 1995 *Acta Opt. Sin.* **6** 641
- [7] Yanovsky V P and Wise F W 1994 *Opt. Lett.* **23** 1952
- [8] Andreoni A , Bondani M and Potenza Marco A C 1998 *Opt. Commun.* **154** 376

Calculation of frequency doubling efficiency of femtosecond pulses in BBO crystals *

Lü Tie-Zheng¹⁾ Wang Tao²⁾ Qian Lie-jia²⁾ Lu Xin¹⁾ Wei Zhi-Yi¹⁾ Zhang Jie¹⁾

¹⁾ (Laboratory of Optical Physics , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 ,China)

²⁾ (State Key Lab for Advanced Photonic Materials and Devices ,Fudan University ,Shanghai 200433 ,China)

(Received 15 May 2001 ; revised manuscript received 13 November 2001)

Abstract

This paper presents a calculation of frequency-doubling efficiency of femtosecond pulses in BBO crystals using Split Fourier Method. This method can clearly provide physical picture of frequency-doubling process of femtosecond pulses , while keeping calculation simple. The calculated conversion efficiency for a 2mm long BBO crystal agrees well with experimental measurements.

Keywords : femtosecond laser , doubled-frequency

PACC : 4260 , 4255B , 4250

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19825110 , 69878032).