

# 三种非线性晶体对锁模激光的倍频\*

吴逢铁 张文珍

(华侨大学电气技术系, 泉州 362011)

**摘要** 采用对撞脉冲锁模(CPM)、凸-抗共振环(ARR)非稳腔Nd:YAG脉冲激光器为基波光源,其输出参数为波长1.06 μm,脉宽10 ps,能量20 mJ,能量起伏1.2%。对KTP, LBO和BBO这三种非线性晶体进行外腔倍频实验,可分别获得43.80%, 33.87%和26.74%的倍频能量转换,实验结果和理论分析一致。

**关键词** 锁模激光, 倍频, KTP晶体, LBO晶体, BBO晶体

**分类号** TN 248.35

倍频技术(SHG)是扩展激光输出波段最有效、应用最广泛的技术之一,绿光波段的皮秒光脉冲在实际应用和基础科学研究中都是一种相当重要的光源。Nd:YAG激光1.06 μm波的倍频光为0.53 μm波长的绿光,在许多应用场合均为物质(如染料激光介质的若丹明、喇曼激光介质的二甲亚砷)的吸收峰,具有广泛的应用价值。因此,研究锁模Nd:YAG激光的二次谐波输出及转换效率具有重要的理论意义和实用价值。

## 1 高倍频转换效率公式

获得高效倍频转换是研究激光倍频的主要目的,这里将从三波非线性耦合方程出发,导出高效倍频转换效率公式。由麦克斯韦电磁场基本方程和物质方程出发,考虑强光和介质作用引起的非线性极化,对相互作用的三列平面电磁波可导出如下的三波非线性耦合基本方程<sup>[1]</sup>

$$\left. \begin{aligned} \frac{dE_1}{dZ} &= -\frac{\sigma_1}{2} \frac{\mu_0}{\epsilon_1} E_1 - i\omega \frac{\mu_0}{\epsilon_1} de E_3 E_2^* e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)Z}, \\ \frac{dE_2^*}{dZ} &= -\frac{\sigma_2}{2} \frac{\mu_0}{\epsilon} E_2^* + i\omega \frac{\mu_0}{\epsilon} de E_1 E_3^* e^{-i(k_1 - k_3 - k_2)Z}, \\ \frac{dE_3}{dZ} &= -\frac{\sigma_3}{2} \frac{\mu_0}{\epsilon_3} E_3 - i\omega \frac{\mu_0}{\epsilon_3} de E_1 E_2 e^{-i(k_1 - k_2 - k_3)Z}. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

在式(1)中,三波电场分别为 $E_1, E_2$ 和 $E_3$ ,其频率、波矢、电导率和介电常数分别为 $\omega, k_i, \sigma_i$ 和 $\epsilon_i (i=1, 2, 3)$ ,  $de$ 为晶体的有效非线性系数。引入新变量 $A_i = \frac{n_i}{\omega} E_i, i=1, 2, 3$ ,代入式(1)中

得

$$\left. \begin{aligned} \frac{dA_1}{dZ} &= -\frac{1}{2}\alpha_1 A_1 - \frac{i\beta}{2} A_2^* A_3 e^{i(\Delta k)Z}, \\ \frac{dA_2^*}{dZ} &= -\frac{1}{2}\alpha_2 A_2^* - \frac{i\beta}{2} A_1 A_3^* e^{i(\Delta k)Z}, \\ \frac{dA_3}{dZ} &= -\frac{1}{2}\alpha_3 A_3 - \frac{i\beta}{2} A_1 A_2 e^{i(\Delta k)Z}, \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

其中  $\Delta k = k_3 - (k_1 + k_2)$ ,  $\alpha_i = \sigma - \mu_0/\epsilon_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ ,  $\beta = de \cdot (\mu_0/\epsilon_0)(\omega_1\omega_2\omega_3/n_1n_2n_3)$ .

考虑二次谐波产生情况( $\omega = \omega = \omega$  和  $\omega = 2\omega = 2\omega$ ), 有  $A_1 = A_2$ . 假设介质对基波和二次谐波透明, 有  $\sigma = 0$ ,  $\alpha = 0$ , 式(2)可简化为

$$\frac{dA_1}{dZ} = -\frac{i\beta}{2} A_3 A_1^* e^{-i(\Delta k)Z}, \quad \frac{dA_3}{dZ} = -\frac{i\beta}{2} A_1^2 A_3 e^{-i(\Delta k)Z}. \quad (3)$$

若进一步假设满足相位匹配条件, 即  $\Delta k = 0$ ,  $e^{i(\Delta k)Z} = 1$ , 且选择  $A_1(0)$  为实数. 那么,  $A_1(Z)$  也为实数. 式(3)简化为

$$\frac{dA_1}{dZ} = -\frac{1}{2}\beta A_1 A_3, \quad \frac{dA_3}{dZ} = -\frac{1}{2}\beta A_1^2, \quad (4)$$

这里  $A_1 = iA_3$ . 解耦合方程(4)得,  $A_3(l) = A_1(0) \tanh[\beta A_1(0)l]$ , 其中  $l$  为倍频晶体长度. 由此得到倍频转换效率( $\eta_{\text{AHC}}$ )为

$$\eta_{\text{AHC}} = \frac{P^{2\omega}}{P^\omega} = \frac{|A_3(l)|^2}{|A_1(0)|^2} = \frac{|A_3(l)|^2}{|A_1(0)|^2} = \tanh^2[\beta A_1(0)l]. \quad (5)$$

将上式具体化, 有  $A_1(0) = n_1/\omega E_1(0)$ , 另有  $\omega = \omega = \omega$ ,  $\omega = 2\omega = 2\omega$ ,  $\epsilon = \epsilon = \epsilon_0 n^2$ . 这样,  $P_1(0)/A = (\epsilon_0/\mu_0\omega |A_1(0)|^2)/2$ . 因此

$$A_1(0) = [(\mu_0/\epsilon_0 \cdot 2P^\omega)/\omega]^1/2, \quad (6)$$

另有

$$\beta = de \cdot \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \frac{\omega_1\omega_2\omega_3}{n_1n_2n_3} = de \cdot \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \frac{2\omega^3}{n^3}. \quad (7)$$

将式(6), (7)代入式(5), 同时考虑相位因子  $\sin(\Delta k l/2)/(\Delta k l/2)$  的影响, 最终得到高倍频转换效率公式为

$$\eta_{\text{AHC}} = \frac{P^{2\omega}}{P^\omega} = \tanh^2\left[2\omega l e \cdot l \left(\frac{\mu_0}{\epsilon}\right)^{3/4} \left(\frac{P^\omega}{A}\right)^{1/2} \frac{\sin(\Delta k l/2)}{(\Delta k l/2)}\right]. \quad (8)$$

式(8)指出, 要获得稳定高效倍频转换需提供稳定、高功率密度( $P^\omega/A$ )的基波光源, 寻找较大的有效非线性系数  $de$  的倍频晶体, 满足相位匹配条件  $\Delta k = 0$ . 此外, 在晶体的可饱和长度内(不产生光逆反转), 提供尽可能大的通光长度  $l$  的晶体.

## 2 优质基波光源

为了获取高效倍频转换, 提供稳定、高功率密度的基波光源是非常必要的. 为此, 我们采用了 CPM, 凸-抗共振环 (ARR) 非稳腔 Nd:YAG 激光器输出的  $1.06 \mu\text{m}$  光作为实验的基波

光源<sup>[1]</sup>. 激光器巧妙地将非稳腔结构和对撞锁模技术结合起来, 既利用了非稳腔输出能量高的特点, 又结合了 CPM 技术输出脉宽窄和输出能量稳定的优点, 是一种理想的基波光源.

我们知道, 对固体激光器采用非稳腔结构, 由于有大的可控模体积, 可充分和有效地利用激光介质中的反转粒子数, 因而可获得强的激光输出. 此外, 非稳腔中低阶和高阶模损耗的差异很大, 容易得到单横模输出. 另一方面, CPM 技术是 80 年代初发展起来的一种新型被动锁模技术<sup>[2]</sup>, 光脉冲在抗共振环中心的可饱和吸收体处对撞所形成的饱和吸收体粒子数瞬态光栅效应, 可非常有效地稳定激光的输出和压缩激光脉宽. 相比于普通直腔式被动锁模(染料盒紧贴于激光全反端镜), CPM 技术可压缩脉宽约 3 倍<sup>[3]</sup>, 实验腔型简图如图 1 所示.

$M_1$  是曲率半径( $R$ )为  $-3\ 000\ \text{mm}$  的凸面全反镜, CPM 腔中的 ARR 由  $M_2$ ,  $M_3$  和  $M_4$  组成, 锁模染料 DC 置于 ARR 中心以求获得最佳对撞效果. 激光采用侧面耦合, 由反射率 50% 的镜  $M_0$  输出. 利用上述腔型, 我们获得基波锁模单脉冲串能量  $E^{(0)} = 19.87\ \text{mJ}$  (实验数据为 10 次以上测量的平均值). 利用公式  $\Delta E/E = [\sum_{i=1}^n |E_i - \bar{E}|] / n\bar{E}$  算得基波能量起伏为 1.2%. 由非共线二次谐波自相关法测

得基波  $1.06\ \mu\text{m}$  脉宽为 10 ps (实验所用 YAG 棒直径为 4.5 mm, 可估算出基波光功率密度约为  $10\ \text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ ). 同时, 利用 HP 54502A, 400 MHz 数字式存储示波器对锁模脉冲进行监测. 实验结果表明, 所采用的激光器是一个较为理想的超短光脉冲基波源.

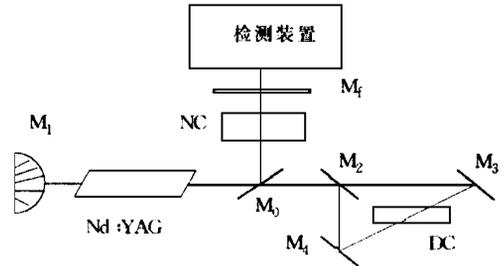


图 1 实验装置简图

### 3 三种非线性晶体

理论指出, 寻求大的有效非线性系数  $d_e$  (也称为有效倍频系数) 的倍频晶体是获得高效倍频转换的另一重要因素. 此外, 由于我们进行的皮秒量级光脉冲的倍频转换, 输出基波光功率密度高达  $10\ \text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ . 因此, 选择倍频晶体不但要考虑其倍频系数的大小, 而且光损伤阈值 ( $P_{th}$ ) 是一个不可忽视的问题. 据此, 我们选择了 3 种优良的非线性晶体——KTP 晶体、LBO 晶体和 BBO 晶体.

#### 3.1 KTP 晶体

KTP 晶体 ( $\text{KTiOPO}_4$ ) 是目前公认较理想的全能型倍频材料, 属双轴晶体, 其有效非线性系数约为 KDP 晶体 15 倍. 对皮秒光脉冲的光损伤阈值大于  $10\ \text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ . 用 KTP 晶体对  $1.06\ \mu\text{m}$  光进行倍频, 最佳相位匹配为 I 类匹配, 匹配角  $\theta_m$  为  $90^\circ$ ;  $Q_m$  为  $21.3^\circ$ . 此外, 该晶体具有较大的相位匹配允许角, 在  $\lambda = 1.06\ \mu\text{m}$  处, 其  $\Delta\theta = 2.12^\circ$ ;  $\Delta Q = 0.82^\circ$ <sup>[4]</sup>. 该晶体不潮解, 化学稳定性好, 使用非常方便.

#### 3.2 LBO 晶体

LBO 晶体 ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ ) 是 10 年前研制成功的又一种新型非线性晶体<sup>[5]</sup>, 属双轴晶体, 其有效倍频系数约为 KDP 晶体的 3 倍 ( $d_e = d_{32} \cos \theta$ ). 此外, LBO 晶体对  $1.06\ \mu\text{m}$  光和  $\tau = 0.1\ \text{ns}$  具有相当高的光损伤阈值 ( $P_{th} = 25\ \text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) 及宽接受角. LBO 晶体的采用 I 类相位匹配, 其 SHG 匹配角为  $\theta = 90^\circ$ ;  $Q = 10.73^\circ$ . 最新修正后的 Sellmeier 方程由下式给出<sup>[6]</sup>, 即

$$\left. \begin{aligned} n_x^2 &= 2.454\ 140 + 0.011\ 249/(\lambda^2 - 0.011\ 350) - 0.014\ 591\lambda^2 - 0.000\ 066\lambda^4, \\ n_y^2 &= 2.539\ 070 + 0.012\ 711/(\lambda^2 - 0.012\ 523) - 0.018\ 540\lambda^2 - 0.000\ 200\lambda^4, \\ n_z^2 &= 2.586\ 179 + 0.013\ 099/(\lambda^2 - 0.011\ 893) - 0.017\ 968\lambda^2 - 0.000\ 226\lambda^4, \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

其中  $\lambda$  的单位为  $\mu\text{m}$ .

### 3.3 BBO 晶体

BBO 晶体 ( $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ) 是 80 年代中期我国首先研制成功的非线性晶体<sup>8)</sup>, 属负单轴晶体, 其有效倍频系数约为 KDP 晶体的 6 倍 ( $de = d_{13}\sin\theta + \cos\theta(d_{11}\cos 3\varphi - d_{22}\sin\varphi)$ ). BBO 晶体在  $\lambda = 0.694\ 3\ \mu\text{m}$  和  $\varphi = 20\ \text{ps}$  处的光损伤阈值大于  $10\ \text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ , 对  $1.06\ \mu\text{m}$  倍频采用 类相位匹配. 根据 Sellmeier 方程, 则

$$\left. \begin{aligned} n_o^2 &= 1.959\ 5 + 0.778\ 2\lambda^2/(\lambda^2 - 0.021\ 63), \\ n_e^2 &= 1.693\ 2 + 0.678\ 2\lambda^2/(\lambda^2 - 0.018\ 16), \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

可求出最佳相位匹配角 ( $\theta_m = 21.57^\circ$ ).

## 4 实验结果与讨论

实验装置简图如图 1 所示, 将非线性晶体(NC)置于  $M_0$  输出处, 并由多维调整架对晶体进行精细调节, 以满足最佳相应匹配, 获得最大二次谐波输出. 在非线性晶体后面加入滤光镜  $M_1(\lambda = 0.53\ \mu\text{m}$  光透过 75%) 以去除未转换的基波光, 同时用 PT-1 型能量计测得 SHG 能量  $E^{2\omega}$ , 即可算出倍频转换效率. 但由于晶体通光面未镀  $1.06\ \mu\text{m}$  增透膜, 考虑菲涅耳反射在每一表面约有 5% 的损耗, 需由公式 ( $\eta_{\text{SHG}}\text{修} = (0.05)^{-2} E^{2\omega}/E^{\omega}$ ) 对结果进行修正, 最后可得到有效倍频能量转换效率. 表 1 列出所使用的倍频晶体参数和 SHG 转换效率.

表 1 晶体参数和实验结果

晶体种类	$l/\text{mm}$	$b/\text{mm}$	$h/\text{mm}$	匹配类型	$\theta/^\circ$	$\varphi/^\circ$	$E^\omega/\text{mJ}$	$E^{2\omega}/\text{mJ}$	$\eta_{\text{SHG修}}/(\%)$
KTP 晶体	5	5	5	类	90	21	19.87	7.86	43.80
LBO 晶体	12	5	7	类	90	11	19.87	6.08	33.87
BBO 晶体	4	5	6	类	22	-	19.87	4.80	26.74

从表 1 可知, 在我们的实验条件下, 获得的倍频能量转换效率高低依次为 KTP 晶体, LBO 晶体和 BBO 晶体. 我们知道三种晶体的有效倍频系数 ( $de$ ) 相对 KDP 晶体分别为 15, 3 和 6, 而实验中所用晶体的通光长度 ( $l$ ) 分别为 5 mm, 12 mm 和 4 mm. 根据导出的高效倍频转换公式 (8), 在其它参数相同且晶体长度在可饱和长度范围内的情况下,  $\eta_{\text{SHG}} \propto de \cdot l$ , 则有  $(de \cdot l)_{\text{KTP}} > (de \cdot l)_{\text{LBO}} > (de \cdot l)_{\text{BBO}} = 15 > 12 > 8$ . 因此, 所获得的实验结果和理论分析基本一致. 一方面, 由于 KTP 晶体不潮解, 相位匹配角大而易于调整等诸多优点, 可以认为对 Nd:YAG 皮秒脉冲激光器可选择 KTP 晶体进行腔外倍频, 以获高效倍频转换的  $0.53\ \mu\text{m}$  绿光输出. 另一方面, 由于激光腔内光功率密度远比腔外高, 采用腔内倍频可获得很高的倍频转换效率. 实验在同一腔型的激光器中, 以 LBO 为腔内倍频元件获得 65.3% 的高效转换<sup>9)</sup>, 以 KTP 为腔内倍频元件可获得 53.4% 的倍频转换<sup>10)</sup>. 在虚共焦非稳腔 Nd:YAG 激光器中, 以 BBO 和 KTP 为腔内倍频元件可分别获 80.0% 和 60.2% 的高效倍频转换<sup>11, 12)</sup>. 当然, 激光腔内频实验应当注意克服由于腔内高功率密度引起的元件损伤.

## 参 考 文 献

- 1 Yariv A. Quantum electronics. 3rd ed. New York: John Wiley & Sons, 1989. 392~393
- 2 Wu Fengtie, Yang Xiangchun, Zhu Xiaolei, et al. High energy and efficient SHG by using convex-antiresonant ring unstable resonator Nd YAG pulsed laser. Opt. Commun., 1994, 108(4~6): 329~332
- 3 Fork R L, Green B L, Shank C V. Generation of optical pulse shorter than 0.1 ps by colliding pulse mode-locking. Appl. Phys. Lett., 1981, 38(9): 671~673
- 4 Kitazima I, Kudoh K. Joint operation of double CPM and FCM in a Nd YAG laser. Opt. Commun., 1997, 137: 290~294
- 5 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术. 北京: 科学出版社, 1995. 47~48
- 6 Chen Chuangtian, Wu Baichang, Jiang Aidong, et al. New nonlinear-optical crystal: LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>. J. Opt. Soc. Am., 1989, B6(4): 616~621
- 7 Wu B C, Xie F L, Chen C T, et al. Generation of tunable coherent vacuum ultraviolet radiation in LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> crystal. Opt. Commun., 1992, 88: 451~454
- 8 Chen C T, Wu B C, Jiang A D, et al. A new-type ultraviolet SHG crystal— $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Sci. Sinica B., 1985, 28(3): 235~243
- 9 Wu Fengtie, Zhing Wenzhen. A highly efficient SHG in CPM, Nd YAG/LBO laser. Chinese J. of Lasers, 1999, B8(1): 390~394
- 10 吴逢铁, 张文珍. 不同皮秒非稳腔中 KTP 晶体的腔内倍频效应. 光学学报, 1999, 19(1): 141~144
- 11 吴逢铁, 张文珍. 共焦非稳腔中皮秒激光的内腔倍频. 光子学报, 1998, 27(6): 490~493
- 12 Wu Fengtie, Zhang Wenzhen. Consideration of angular acceptance angle in BBO crystal on a highly efficient SHG. Optics & Laser Technology(U. K), 1998, 30(3-4): 189~192

## Frequency Doubling of Mode-Locked Laser in Three Excellent Nonlinear Crystals

Wu Fengtie      Zhang Wenzhen

(Dept. of Elec. Tech., Huaqiao Univ., 362011, Quanzhou)

**Abstract** Experiment of extracavity frequency doubling was conducted on three nonlinear crystals, namely, KTP, LBO and BBO. A colliding pulse mode-locked (CPM) Nd YAG pulsed laser with a convex-antiresonant ring (ARR) was adopted as light source of fundamental wave. The output parameters of this laser include wavelength of 1.06  $\mu\text{m}$ , pulse width of 10 ps, energy of 20 mJ and fluctuation of energy of 1.2%. The frequency doubling experiment on KTP, LBO and BBO resulted in energy conversion of 43.8%, 33.87% and 26.74% respectively. Experimental results coincide with those from theoretical analysis.

**Keywords** mode-locked laser, frequency doubling, KTP crystals, LBO crystals, BBO crystals