

非共线二次谐波发生法及超短光脉冲时间宽度的测量

黄禛启

(物理学系)

摘要

在假设麦克斯韦方程在非线性介质中仍然适用的基础上,我们分析了应用单轴晶体非共线倍频产生的二次谐波的电场空间分布,讨论了根据这个分布导出的三种超短脉冲时间宽度的测量方案,并给出应用其中一种方案对本实验室一台被动锁模YAG激光脉宽测量的结果。

早在1966年, M. Maier等人就提出了应用单轴晶体非共线配置产生二次谐波(NSHG)的方法,并根据交叉入射基波的相关性的测量,确定基波脉冲的时间特性^[1]。七十年代, E. P. Ippen等人应用这一技术作了一系列的工作^[2]。近年来,由于连续波染料激光的发展,以及微微秒单脉冲测量的需要,非共线产生二次谐波的技术仍受到重视,而且还在不断发展。1978年, R. L. Fork等人应用这种无背景二次谐波发生法设计了“自相关干涉仪”,并应用于激光脉冲的实时强度的测量^[3]。1980年, K. L. Sala等人进一步改善R. L. Fork等人的装置,应用于主动锁模氩离子激光同步泵浦染料激光器的腔长及其他参数的最佳选择,发挥了良好的作用^[4]。Sala等人指出,这项技术有希望推广到其他动态过程的测量,并正为此而努力。在超短光脉冲单脉冲时间特性的测量方面,1977年, J. Janszhy等人首先从理论上讨论非共线倍频的电场空间时间特性以及用于确定超短光脉冲的时间特性的可能性^[5]。1979年, C. Kolmeder等人根据Janszhy的理论,用光学多道分析器测量二次谐波的空间分布特性,只用单次发射就可以确定光脉冲的持续时间,并且具有极高的灵敏度^[6]。新型光学材料—水甲酸锂的应用,使这种单次发射脉宽测量技术推广到更短的波长范围^[7]。文献[7]提出了一种产生微分时间延迟的技术,使测量的范围从1ps扩展到80ps。

本文从麦氏方程出发,应用傅里叶变换得出二次谐波电场强度的解析表示,并根据这个表示讨论三种测量基波时间特性的可能性。最后给出应用其中一种测量方案,测量本实验室被动锁模YAG固体激光脉冲的时间宽度的结果。

一、非线性介质中的波动方程

采用MKS制,考虑电磁波在非线性介质中传播。把线性极化与非线性极化分开,

1982年9月收到,本文是在高兆兰教授,黄旭、方心东副教授指导下完成的。

并假设介质是非导电的, 则从麦氏方程得到:

$$\nabla^2 \vec{e}^{(\omega_3)} = \mu \epsilon_3 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{e}^{(\omega_3)} + \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL} \quad (1)$$

其中, $\vec{P}^{NL} = 2 \vec{d} : \vec{e}^{(\omega_1)} \vec{e}^{(\omega_2)}$

$$\vec{e}^{(\omega_1)} = \frac{1}{2} \left\{ \vec{E}_1(\vec{r}, t) \exp[i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})] + \text{c.c.} \right\}$$

$$\vec{e}^{(\omega_2)} = \frac{1}{2} \left\{ \vec{E}_2(\vec{r}, t) \exp[i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})] + \text{c.c.} \right\}$$

$$\vec{e}^{(\omega_3)} = \frac{1}{2} \left\{ \vec{E}_3(\vec{r}, t) \exp[i(\omega_3 t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r})] + \text{c.c.} \right\}$$

$\vec{e}^{(\omega_3)}$ 表示二次谐波的电场矢量, ϵ_3 表示介质的(谐波)介电常数, μ 为介质的磁导系数. \vec{P}^{NL} 表示极化矢量的非线性部份. \vec{d} 表示介质的二阶极化张量(它是一个三阶张量). 在二次谐波发生的情况下, $\omega_1 = \omega_2$.

(1)式表示, 基波电矢量 $\vec{e}^{(\omega_1)}$ 、 $\vec{e}^{(\omega_2)}$ 引起介质极化, 其中非线性部份 \vec{P}^{NL} 产生二次谐波, 符合 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 及 $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3$ 条件的二次谐波得到加强, \vec{P}^{NL} 可以认为是角频率为 ω_3 的波源.

下面作一些简化近似.

$$\nabla^2 \vec{e}^{(\omega_3)} \simeq -\frac{1}{2} \left\{ \left[2i(\vec{k}_3 \cdot \nabla) \vec{E}_3(\vec{r}, t) + |\vec{k}_3|^2 \vec{E}_3(\vec{r}, t) \right] \times \exp[i(\omega_3 t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r}) + \text{c.c.}] \right\} \quad (2)$$

$$\mu \epsilon_3 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{e}^{(\omega_3)} \simeq \frac{1}{2} \mu \epsilon_3 \left\{ \left[2i\omega_3 \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}_3(\vec{r}, t) - \omega_3^2 \vec{E}_3(\vec{r}, t) \right] \times \exp[i(\omega_3 t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r})] + \text{c.c.} \right\} \quad (3)$$

利用 $|\vec{k}_3|^2 = \mu \epsilon_3 \omega_3^2$ 并假设基波振幅随时间的变化相对于位相因子的变化是缓慢的. 则(1)式可变为:

$$\left[(\vec{k}_3 \cdot \nabla) + \mu \epsilon_3 \omega_3 \frac{\partial}{\partial t} \right] \vec{E}_3(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} i \mu \omega_3^2 \vec{d} : \vec{E}_1(\vec{r}, t) \vec{E}_2(\vec{r}, t) \cdot \exp[i\Delta \vec{k} \cdot \vec{r}] \quad (4)$$

其中 $\Delta \vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3$.

这就是我们要求的非线性介质中的波动方程. 原则上, 已知 $\vec{E}_1(\vec{r}, t)$ 、 $\vec{E}_2(\vec{r}, t)$ 便可以根据(4)式求解 $\vec{E}_3(\vec{r}, t)$, 确定 $\vec{E}_3(\vec{r}, t)$ 的时间空间分布. 但在一般情况下, 求解 $\vec{E}_3(\vec{r}, t)$ 是不容易的. 在单轴晶体或光线在双轴晶体主平面内传播的情况下, (4)式具有简单的形式.

二、单轴晶体的非线性极化

采用晶体的主轴坐标系 $oxyz$, z 轴代表光轴(图1). 从相位匹配条件考虑, 基波为寻

常光(o光)。以KDP晶体为例,其二阶极化张量用下面的矩阵表示:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$$

即在主轴坐标系中,张量的大部份元素为零,只有

$$d_{123} = d_{132} = d_{14} \neq 0$$

$$d_{213} = d_{231} = d_{14} \neq 0,$$

$$d_{312} = d_{321} = d_{36} \neq 0.$$

根据张量二次点乘的法则,得到

$$\begin{aligned} \vec{d} &: \vec{E}_1(\vec{r},t) \vec{E}_2(\vec{r},t) \\ &= (d_{123} E_{1k} E_{2j} + d_{132} E_{1j} E_{2k}) \vec{i} \\ &\quad + (d_{213} E_{1k} E_{2i} + d_{231} E_{1i} E_{2k}) \vec{j} \\ &\quad + (d_{312} E_{1j} E_{2i} + d_{321} E_{1i} E_{2j}) \vec{k} \end{aligned} \quad (5)$$

其中 \vec{i} 、 \vec{j} 、 \vec{k} 为主轴坐标系的单位矢量。因为

$$E_{1i} = -E_1 \sin \phi, E_{1j} = E_1 \cos \phi, E_{1k} = 0,$$

$$E_{2i} = -E_2 \sin(\phi + 2\alpha), E_{2j} = E_2 \cos(\phi + 2\alpha), E_{2k} = 0.$$

故(5)式可以写成:

$$\vec{d} : \vec{E}_1(\vec{r},t) \vec{E}_2(\vec{r},t) = -d_{36} \sin(2\phi + 2\alpha) E_1(\vec{r},t) E_2(\vec{r},t) \vec{k} \quad (6)$$

对比(4)、(6)式,说明 $E_3(\vec{r},t)$ 沿 \vec{k} 方向偏振,即二次谐波必为e光。定义非共线配置倍频有效系数 $d_{\text{eff}}^{(1)}(NC)$ 为:

$$d_{\text{eff}}^{(1)}(NC) = -d_{36} \sin(2\phi + 2\alpha) \quad (7)$$

从(7)式易见,为了获得最佳转换效率,入射方位角 ϕ 的取值必须满足 $\phi + \alpha = \frac{\pi}{4}$,

其中 α 根据相位匹配条件 $n_o^\omega \cos \alpha =$

$n_e^{2\omega}$ 确定。其结果用图2表示。另一种光路结构是让两束基波在一个平面内传播,垂直于该平面偏振,这一平面包含光轴,并与 x 轴成夹角 ϕ 。用类似的方法得到, $d_{\text{eff}}^{(1)}(NC) =$

$-d_{36} \sin 2\phi$, 当 $\phi = 45^\circ$ 时,获得最佳转换效率。其结果用图3表示。

三、二次谐波电场的时间空间分布

既然 $E_3(\vec{r},t)$ 的振动方向已经确定,(4)式可以作为标量方程来处理。为了描述方

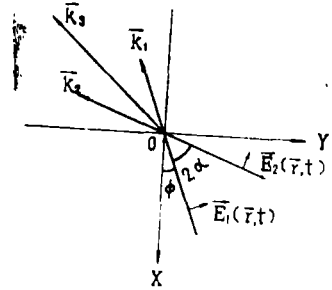


图1 光线在单轴晶体的主轴坐标系中传播

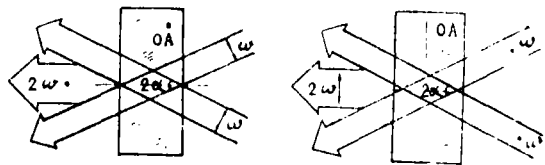


图2

图3

便,不再采用晶体的主坐标系,而采用图4所示的坐标系.光轴平行于 x 轴, \vec{k}_3 平行于 z 轴.在这个坐标系中:

$$(\vec{k}_3 \cdot \nabla) E_3(\vec{r}, t) = k_3 \frac{\partial}{\partial z} E_3(\vec{r}, t).$$

以 V_e 表示谐波(非寻常光)的相速度.则 $V_e = \frac{1}{\sqrt{\mu \epsilon_3}}$

应用 $k_3 = \sqrt{\mu \epsilon_3} \omega_3$ 的关系.则(4)式可以写成:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{V_e} \frac{\partial}{\partial t} \right) E_3(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} i \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_3}} \omega_3 d E_1(\vec{r}, t) E_2(\vec{r}, t) \exp(i \Delta \vec{k} \cdot \vec{r}) \quad (8)$$

其中 d 表示 $d_{\text{eff}}^{(1)}$ (NC). 在位相匹配条件下, $\Delta \vec{k} = 0$.

假设入射基波是有限宽度的横向呈高斯分布的脉冲波,脉冲波型在时间域上也呈高斯分布(纵向高斯分布),则在选定的坐标系中,两束基波分别表为:

$$E_1(\vec{r}, t) = E_{10} \exp \left\{ -\beta^2 \left[(y \cos \alpha - z \sin \alpha)^2 + x^2 \right] \right\} \times \exp \left\{ -\gamma^2 \omega_1^2 \left(t - \frac{y \sin \alpha + z \cos \alpha}{u_0} \right)^2 \right\} e^{i \Phi_1} \quad (9)$$

$$E_2(\vec{r}, t) = E_{20} \exp \left\{ -\beta^2 \left[(y \cos \alpha + z \sin \alpha)^2 + x^2 \right] \right\} \times \exp \left\{ -\gamma^2 \omega_1^2 \left(t - \frac{-y \sin \alpha + z \cos \alpha}{u_0} + \tau \right)^2 \right\} e^{i \Phi_2} \quad (10)$$

在(9)、(10)式中, β 代表空间衰减常数, γ 为时间衰减常数, u_0 为基波在晶体中的群速度, τ 为两脉冲的时间相对延迟, Φ_1 、 Φ_2 为初位相.

我们之所以可以这样假设,是因为在忽略相速度 V_0 与群速度 u_0 的差别时,(9)式或(10)式是波动方程 $\nabla^2 \vec{e} = \frac{1}{V_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{e}$ 的近似解,而这种表示能较好地反映锁模激光脉冲的实际情况.

这样表示法,表明光束的强度横向半宽度(FWHM)为:

$$\Delta H_r = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{2}\beta} = \frac{\sqrt{2\ln 2}}{\beta} \quad (11)$$

而在时间域上脉冲强度的时间半宽度(FWHM)为:

$$\Delta t_p = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{2}\gamma\omega_1} = \frac{\sqrt{2\ln 2}}{\gamma\omega_1} \quad (12)$$

设谐波的初位相为 Φ_3 .把(9)、(10)式代入(8)式,应用傅立叶变换的方法,利用相位匹配条件下的关系 $\frac{z \cos \alpha}{V_0} = \frac{z}{V_e}$, 并忽略 V_0 与 u_0 的差别,可以解出:

$$E_3(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon_3}} \omega_3 d E_{10} E_{20} \int_{z_0}^z \exp(-2\beta^2 z^2 \sin^2 \alpha) dz$$

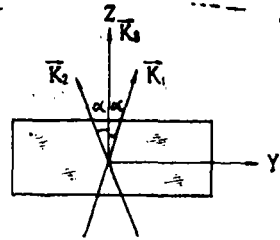


图4

$$\begin{aligned}
 & \times \exp \left[-2\beta^2 (y^2 \cos^2 \alpha + x^2) \right] \\
 & \times \exp \left[-2\gamma^2 \omega_1^2 \left(t - \frac{z}{V_c} + \frac{\tau}{2} \right)^2 \right] \\
 & \times \exp \left[-\frac{1}{2} \gamma^2 \omega_1^2 \left(\tau + \frac{2y \sin \alpha}{u_0} \right)^2 \right] \\
 & \times \exp \left[i \left(\Phi_1 + \Phi_2 - \Phi_3 - \frac{\pi}{2} \right) \right].
 \end{aligned} \tag{13}$$

(13)式表明，二次谐波的空间时间分布特性可以表为三个高斯函数的乘积。

四、三种测量脉宽的方案

考虑从晶体出射的二次谐波的总能量W：

$$\begin{aligned}
 W & \propto \int |E_3|^2 dt \\
 & \propto \exp \left\{ -4 \left(\beta^2 \cos^2 \alpha + \gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin^2 \alpha}{u_0^2} \right) \left(y + \frac{1}{2} \frac{\gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin \alpha}{u_0} \tau}{\beta^2 \cos^2 \alpha + \gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin^2 \alpha}{u_0^2}} \right)^2 \right\} \\
 & \times \exp \left\{ -\gamma^2 \omega_1^2 \tau^2 \frac{\beta^2 \cos^2 \alpha}{\beta^2 \cos^2 \alpha + \gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin^2 \alpha}{u_0^2}} \right\} \times \exp \left\{ -4\beta^2 x^2 \right\}
 \end{aligned} \tag{14}$$

根据(14)式可以设计三种测量脉宽的方案。

(1)测量二次谐波的空间积分能量W(τ)作为相对延迟τ的函数

$$\begin{aligned}
 W(\tau) & \propto \int dx \int dy \int |E_3|^2 dt \\
 & \propto \exp \left\{ -\gamma^2 \omega_1^2 \frac{\tau^2 \beta^2 \cos^2 \alpha}{\beta^2 \cos^2 \alpha + \gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin^2 \alpha}{u_0^2}} \right\}
 \end{aligned} \tag{15}$$

通常称W(τ)为相关函数。由(15)式，相关函数是一高斯函数，其半宽度(FWHM)Δτ与脉冲半宽度Δt_p有如下关系：

$$\Delta \tau^2 = 2 \Delta t_p^2 \left[1 + \left(\frac{\Delta H_r \operatorname{tg} \alpha}{u_0 \Delta t_p} \right)^2 \right] \tag{16}$$

从(16)式我们不难判断，如果 $\left(\frac{\Delta H_r \operatorname{tg} \alpha}{u_0 \Delta t_p} \right) \gg 1$ ，则Δτ基本上由ΔH_r确定，与Δt_p无关，因而由测量W(τ)不能得到关于脉冲时间特性的信息。如果 $\frac{\Delta H_r \operatorname{tg} \alpha}{u_0 \Delta t_p} \ll 1$ ，则

$$\Delta t_p \approx \frac{1}{\sqrt{2}} \Delta \tau. \tag{17}$$

这是共线配置的情况。本实验室被动锁摸YAG固体激光的脉冲宽度Δt_p介于15ps至50ps之间，考虑到光束的横向半宽度ΔH_r<0.2cm，故(16)式中第二项的贡献是很

小的, 实验结果的处理采用(17)式已足够精确。

设基波为 1.06μ 。对KDP晶体, $\alpha = 10^\circ$; 对一水甲酸锂晶体, $\alpha = 21.3^\circ$ 。取 $u_0 \approx V_0$, 则不难估计, 对1ps的光脉冲, 为了保证相关函数保留足够的关于脉冲的时间特性的信息, 例如要求 $\frac{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha}{u_0 \Delta t_p} \leq 0.5$, 则 ΔH_T 应分别小于或等于0.06cm及0.03cm。

(2). 测量 y 方向能量分布的半宽度 ΔH_y 。

由(14)式得:

$$\Delta H_y = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{2\left(\beta^2 \cos^2 \alpha + \gamma^2 \omega_1^2 \frac{\sin^2 \alpha}{u_0^2}\right)^{\frac{1}{2}}}$$

$$\text{或 } \Delta H_y = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{u_0 \Delta t_p}{\sin \alpha} \left[\frac{1}{1 + \left(\frac{u_0 \Delta t_p}{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha}\right)^2} \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (18)$$

由(18)式易见, 若 $\frac{u_0 \Delta t_p}{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha} \gg 1$, 则 ΔH_y 基本上由 ΔH_T 确定, 与 Δt_p 无关。由测定 ΔH_y 不能得到关于脉冲的时间信息。若 $\frac{u_0 \Delta t_p}{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha} \ll 1$, 则

$$\Delta t_p = \frac{\sqrt{2} \Delta H_y \sin \alpha}{u_0} \quad (19)$$

(18)、(19)式是单次发射测量脉宽的根据。对ps量级的脉冲, 只要适当地扩束, 即增大 ΔH_T , (19)式的条件总可以满足。对脉冲宽度较大的脉冲, 例如几十微微秒的脉冲, 一般必须考虑有限光束引起的修正。

(3) 测量 y 方向能量分布极大值的位移量 Δy 。

由(14)式得:

$$2\Delta y = \frac{u_0 \tau}{\sin \alpha} \cdot \frac{(\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha / u_0 \Delta t_p)^2}{1 + (\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha / u_0 \Delta t_p)^2} \quad (20)$$

$$\text{或 } \Delta t_p = \frac{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha}{u_0} \sqrt{\frac{u_0 \tau}{\sin \alpha} \cdot \frac{1}{2\Delta y} - 1} \quad (21)$$

从(20)式容易判断, 若 $\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha / u_0 \Delta t_p \gg 1$, 则 Δy 与 Δt_p 无关, 由测量 Δy 不能得到 Δt_p 的任何信息。但如果 $\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha / u_0 \Delta t_p \ll 1$, 则 Δy 很小, 该法无实用意义。实际计算表明, 就 $\Delta t_p \approx 10\text{ps}$ 的脉冲而言, 对于KDP晶体, 只要 $\Delta H_T \approx 1.1\text{cm}$; 而对于一水甲酸锂晶体, 只要 $\Delta H_T \approx 0.53\text{cm}$, 则 Δy 分别可达0.15cm及0.07cm。用光学多道分析器, 只要分别测出 ΔH_T 及 Δy , 则 Δt_p 可以完全确定。

实际工作中, 如果不希望确定零点($\tau = 0$), 可以采取差分的方法: 在光学延迟线的零点同一侧选取两个位置, 设相对延迟分别为 τ_1 和 τ_2 , 分别记录两种情况下的最大值位置 y_1 、 y_2 , 根据(20)、(21)式不难得出,

$$\Delta t_p = \frac{\Delta H_T \operatorname{tg} \alpha}{u_0} \sqrt{\frac{u_0(\tau_1 - \tau_2)}{\sin \alpha} \cdot \frac{1}{2(y_1 - y_2)} - 1} \quad (22)$$

最后指出, 前面公式中的 ΔH_T 是指光束在晶体中的横向宽度。实际测量我们只能测

量光束在空气中的横向宽度。设空气中的横向宽度为 ΔH_{TA} ，则根据折射定律，不难得到：

$$\Delta H_T^2 = \frac{\cos^2 \alpha}{1 - n_0^2 \sin^2 \alpha} \Delta H_{TA}^2 \quad (23)$$

五、实验结果

比较前面三种实验方法，第一种方法的适用范围最广。第二、第三种方法，对于脉冲宽度较大的对象，扩束的要求很苛刻，甚至达到无法实现的程度。实际计算表明，后两种方法适用的范围是脉宽小于10ps、

我们采用第一种方法，对本实验室被动锁模 YAG 固体激光的脉冲宽度进行测量，结果表明，相关函数基本上是高斯型函数，脉冲宽度 $\Delta t_p = 46ps$ (图 5)。这个结果证明前面关于脉冲波型的基本假设是合理的。与用双光子荧光法测量的结果 ($\Delta t_p = 40ps$) 及用晶体偏转法⁽⁸⁾对同类型激光测量的结果 ($\Delta t_p = 49ps$) 比较，我们的测量结果是可以接受的。

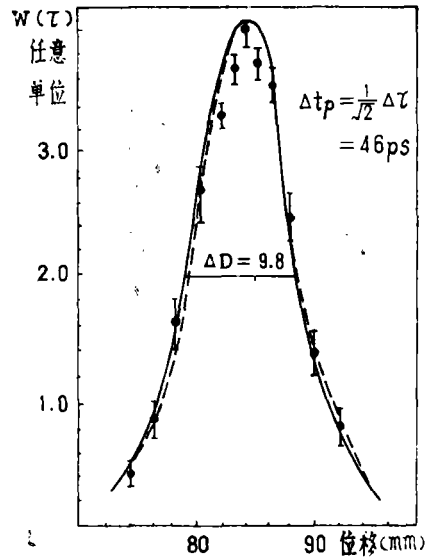


图 5 相关函数曲线

参 考 文 献

- (1) M. Maier, W. Kaiser and J. A. Gicordmaine, *Phy. Rev. Lett.*, **17**(1966), 1275.
- (2) E. P. Ippen, C. V. Shank and A. Bergman, *Chem. Phys. Lett.*, **38**(1976), 611.
C. V. Shank and E. P. Ippen, *Appl. Phys. Lett.*, **26**(1975), 62.
E. P. Ippen and C. V. Shank, *Appl. Phys. Lett.*, **27** (1975), 488.
- (3) R. L. Fork and F. A. Beisser, *Appl. Opt.*, **17**, (1978), 3534.
- (4) K. L. Sala et al., *IEFE J.*, **QE-16** (1980), 990.
- (5) J. Janszhy et al., *Opt. Commun.*, **23** (1977), 293.

- (6) C. Kolmeder, W. Zinth and W. Kaiser, *Opt. Commun.*, **30** (1979), 453.
- (7) R. Wyatt and E. E. Marinero, *Appl. Phys.*, **25**(1981), 297.
- (8) C. L. M. Ireland, *Some Design Considerations and Applications of Fast Crystal Deflector*, In "Laser Advances and Applications", Ed. by B.S. Whereett.

Noncollinear Second Harmonic Generation and Measurement of Ultrashort Light Pulse Duration

Huang Zhenqi

Abstract

Supposing Maxwell equations are valid in nonlinear material, we have analysed the spatial distribution of the electric field of second harmonic in noncollinear frequency doubling using a monoaxial crystal. Three measurement schemes of ultrashort light pulse duration originating from this distribution have been discussed, and the measurement result of a passive mode locked YAG solid state laser in our laboratory by using one of these three methods has also been given.