

## 超短脉冲激光的高效三倍频实验研究

许伟民 李永春 何慧娟 顾圣如

(中国科学院上海光机所)

## Experimental study on THG of ultrashort laser pulses

Xu Weiming, Li Yongchun, He Huijuan, Gu Shengru

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai)

**提要:** 我们采用 KDP(II)/KDP(II) 偏振失配装置, 在 ps Nd: YAG 锁模激光器上进行三倍频实验, 能量转换效率达到 52%。模拟实验条件计算的理论, 效率曲线与实验结果符合得很好。

**关键词:** 超短脉冲, 三倍频

Nd: YAG 锁模激光器可以得到几十个皮秒(ps)脉冲宽度的超短脉冲激光。其三倍频所产生的  $0.3547 \mu\text{m}$  激光, 是目前比较容易得到的高强度紫外光源(UV)。它在激光光谱、等离子体物理、生物以及可调谐激光器等领域有着十分重要的作用。

## 一、装 置

为了达到高的三倍频(THG)转换效率, 我们采用的装置应该满足以下两个条件: 首先要求进入和频晶体的倍频光和基波光的能量比例接近 2:1, 其次要求装置没有(或很小)偏振损耗(指由于进入晶体的两束光波偏振方向不匹配而产生的能量损耗)。另外, 装置的选择在很大程度上还取决于入射光功率密度(光强度)的大小。计算表明, 在低功率密度下宜采用 I/II 类(I 类倍频, II 类和频)完全匹配装置(图 1A), 该装置没有偏振损耗。而在高功率密度下则应采用 I/II 类位

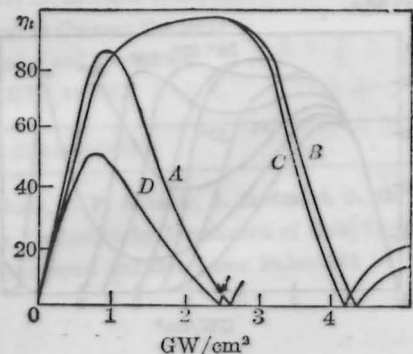


图1 平面波三倍频效率的理论曲线  
A-I/II 类完全匹配装置; B-I/II 类位相失配装置; C-II/II 类偏振失配装置; D-II/II 类完全匹配装置

相失配装置或 II/II 类偏振失配装置<sup>[1]</sup>(图 1B、C), 它们分别用调节倍频晶体的位相失配角  $\Delta\theta$ , 或入射光的偏振角  $\theta_p$ (图 2) 来限制倍频效率以满足上述两个条件。前者不存在偏振损耗, 后者在高效率工作时偏振损耗很小。但是位相失配装置要求倍频晶体的位相匹配

收稿日期: 1987 年 8 月 24 日。

角调节精度高达  $20/L_s \mu\text{rad}$  (对 KDP (I) 计算,  $L_s$  是倍频晶体长度, 调节精度是指效率下降小于 10% 所允许的误差值), 这是相当困难的。而偏振失配装置只要求偏振角的调节精度在  $1^\circ$  左右。另外, 偏振失配装置的位相匹配角宽度 (FWHM) 也比位相失配装置大出近 1 倍。因此, 尽管两类装置的效率曲线相近 (图 1B、C), 但在调整中, 偏振失配装置远优于位相失配装置。所以在实验中, 我们采用 II/II 类偏振失配装置 (图 2)。

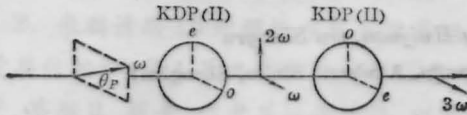


图 2 II/II 类偏振失配装置示意图

图 3 显示了不同偏振方向入射时, 偏振失配装置的三倍频效率的理论曲线, 在  $\theta_p = 35^\circ \sim 36^\circ$  时, 装置满足前叙两个条件, 接近最佳状态。

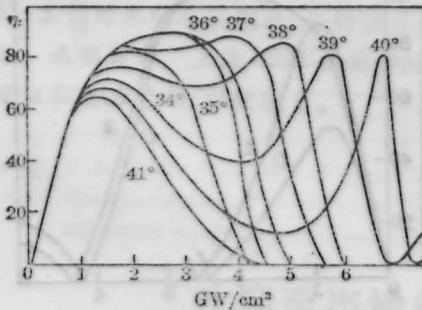


图 3 II/II 类偏振失配装置在平面波以不同偏振角入射时的三倍频理论效率曲线 ( $L_s = L_t = 15 \text{ mm}$ )

倍频与和频晶体的位相失配角 ( $\Delta\theta_s, \Delta\theta_t$ ) 会使最佳偏振角发生变化 (图 4)。但是, 当  $\Delta\theta_s = \Delta\theta_t \leq 0.25 \text{ mrad}$  时, 它仍在  $36^\circ$  左右。如果位相失配角继续增大, 则最佳偏振角迅速变大, 同时效率下降, 对偏振角的变化也变得不敏感。

对于不同的入射光功率密度, 最佳偏振角也是不同的 (图 5)。功率密度越大, 最佳偏

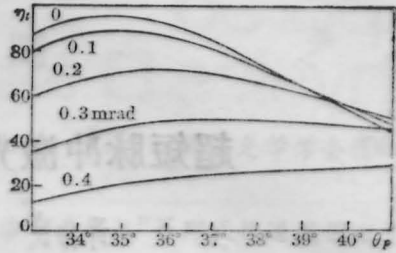


图 4 在不同的位相失配角下, 三倍频效率随偏振角的变化曲线  
 $I = 2 \text{ GW/cm}^2, L = 15 \text{ mm}, \Delta\theta_s = \Delta\theta_t$

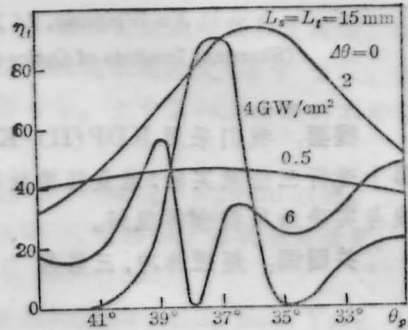


图 5 在不同的入射光功率密度下, 三倍频效率随偏振角的变化曲线

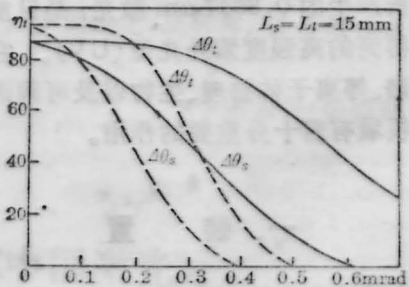


图 6 在不同的入射光功率密度下, 三倍频效率随位相失配角的变化曲线

实线  $I = 2 \text{ GW/cm}^2, \theta_p = 36^\circ$   
虚线  $I = 4 \text{ GW/cm}^2, \theta_p = 37^\circ$

角也越大。但最佳状态下 ( $\theta_p \approx 35^\circ \sim 36^\circ$ ) 工作时, 偏振角与位相匹配角的宽度 (FWHM) 最大 (图 5、图 6)。例如在  $I = 2 \text{ GW/cm}^2, L_s = L_t = 15 \text{ mm}$  时 ( $L_s, L_t$  分别是倍频与和频晶体的长度), 最佳偏振角  $\theta_{p0} = 35.3^\circ, \text{FW}(\theta_p) = 11^\circ, \text{FW}(\Delta\theta_s) = 1.14 \text{ mrad}, \text{FW}(\Delta\theta_t) = 0.73 \text{ mrad}$ 。当入射光功率密

度进一步提高到  $I > I_m$  时 ( $I_m$  是最佳状态下三倍频效率最大时所对应的入射光功率密度), 调整变得困难。如  $I = 4 \text{ GW/cm}^2$  时 ( $L_s = L_t = 15 \text{ mm}$ ),  $\theta_{p0} = 37^\circ$ ,  $\text{FW}(\theta_p) = 3.1^\circ$ ,  $\text{FW}(\Delta\theta_s) = 0.63 \text{ mrad}$ ,  $\text{FW}(\Delta\theta_t) = 0.38 \text{ mrad}$ 。而且当入射光功率密度  $I > I_m$  时, 三倍频光的空间与时间分布还会发生畸变。因此我们一般取  $I \leq I_m$ , 这时的  $\theta_{p0}$  保持在  $35^\circ \sim 36^\circ$  之间不变。

本节中所有计算都假设入射光是平面波, 装置采用 KDP(II) 晶体。

## 二、晶体选择

对于高强度脉冲激光三倍频, 其晶体的选择首先取决于它是否有高的损伤阈值, 其次再考虑下列条件: 1) 能够得到足够大小的优质晶体。2) 有大的有效非线性系数, 能得到高的频率转换效率。3) 有大的位相匹配角宽度  $\Delta\theta$ , 最好能  $90^\circ$  匹配。

KDP 晶体是目前比较适宜于作高功率脉冲激光三倍频晶体的材料(表 1)。它的损伤阈值高, 吸收小, 能够得到大块晶体, 在高功率密度区域可得到  $70 \sim 80\%$  的倍频效率。另外, KDP 晶体的加工也比较方便。但是由于 KDP 晶体属于水解晶体, 必须密封使用, 因此增加了三倍频过程中的能量损耗。而且 KDP 晶体的非线性系数也不大, 需要比较厚的晶体才能满足使用的需要。

对于 KDP(II) 晶体, 在高斯脉冲(时间和空间分布都是高斯线型)激光入射时, 三倍频的最佳长度为<sup>[2]</sup>

$$L_s^2 = 9.5 \tau_{\text{FW}} a_{\text{FW}}^2 \phi(x) / WT_s \quad (1)$$

下标 FW 是指 FWHM。  $\tau_{\text{FW}}$  是脉冲宽度, 其单位为 ps。光斑宽度  $a_{\text{FW}}$  和晶体长度  $L_s$  的单位都是 mm。入射光能量  $W$  的单位是 mJ, 取其最大值计算。  $T_s$  是倍频与和频晶体之前所有窗口以及晶体表面的透射率,  $\phi(x)$  是一个由位相失配和入射光强

表 1 KDP(II) 晶体部分参数

透射波段( $\mu\text{m}$ )	0.2~1.5	
非线性系数	$d_{13} = d_{36} = 5 \times 10^{-24} (\text{mks})$	
吸收( $1.06 \mu\text{m}$ )	0.03(1/cm)	
( $0.53, 0.35 \mu\text{m}$ )	~0	
损伤阈值( $1.06 \mu\text{m}$ )	23( $\text{GW/cm}^2$ )*	
( $0.53 \mu\text{m}$ )	17( $\text{GW/cm}^2$ )	
	倍 频	和 频
$L \cdot \Delta\theta (\text{cm} \cdot \text{mrad})$	1.09	0.52
$L \cdot \Delta\lambda (\text{cm} \cdot \text{\AA})$	18.8	1.01
$L \cdot \Delta T (\text{cm} \cdot ^\circ\text{C})$	3.5	8.4
$\theta_m (25^\circ\text{C})$	$59^\circ$	$58.3^\circ$
离散角 $\alpha$	$1^\circ$	$1.5^\circ$

\* 在激光脉冲宽度为 0.2 ns 时测量

表 2 激光输出的部分参数

发散角 $\theta_d$	0.6(mrad)
单脉冲输出能量(W)	15(mJ)
光束直径 $2a_{\text{FW}}$	5(mm)
脉冲宽度 $\tau_{\text{FW}}$	45(ps)
序列脉冲输出能量	10~180(mJ)
序列脉冲个数	9
带宽( $0.53 \mu\text{m}$ )	0.05 nm

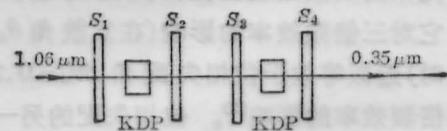


表 3 晶体表面及其窗口的透射率

$\lambda (\mu\text{m})$	1.064	0.532	0.355
$S_1$	99.1%		
$S_2$	89.5%	94.2%	
$S_3$	93.9%	92.2%	91.5%
晶体表面	94%	94%	94%

度决定的参数<sup>[2]</sup>。如果估算得到的  $L_s$  值太大, 则相应的光孔效应、吸收以及晶体切割误差等因素对三倍频效率的影响就会明显增

加,尤其是装置的位相匹配角宽度随着晶体长度的增加而线性变小。因此在这种情况下,需要综合考虑各种因素来确定晶体长度。

实验中使用激光器的输出参数见表2。晶体窗口及其表面的透射率见表3,  $T_s=0.94$ 。经过估算,并考虑现有的晶体情况,取装置的倍频晶体的长度为17.8mm,和频晶体的长度为20mm。

### 三、影响效率诸因素的估算

实验表明,影响锁模激光三倍频的主要因素有:入射光功率密度、光束发散度、晶体调整、晶体表面及其窗口的反射损耗、序列脉冲效应以及所取的倍频与和频晶体长度等等。

激光器输出的光束质量,是限制三倍频效率的主要因素。它的影响很复杂,主要可以归结为光束的发散和畸变两大类。

激光器光路调整好以后,输出光束的主要畸变是衍射效应。由于实验中使用的激光器在二级放大输出后,还能观察到一个衍射环。用夫朗和费圆孔衍射近似估算,这时衍射效应使效率下降到原来的92%<sup>[2]</sup>。

光束的发散是装置位相失配的主要来源,它对三倍频效率的影响(在发散角 $\theta_d$ 不太大时)近似等效于位相失配角 $\Delta\theta_d=0.2\theta_d$ 对三倍频效率的影响<sup>[2]</sup>。位相失配的另一个来源是晶体的调整误差。晶体调整架所产生的最大位相失配角可以近似地表示为: $\Delta\theta_c=\frac{\sqrt{2}}{2}(\alpha_x+\alpha_y)$ <sup>[2]</sup>。 $\alpha_x$ 、 $\alpha_y$ 分别是晶体调整架的方位和俯仰调节误差(表4),它是调整架微调系统的最小手动误差。在微动手轮直径为 $\phi 15\sim 60$ mm时,手轮的转动调节误差为 $1^\circ\sim 1/4^\circ$ <sup>[3]</sup>。

根据表4可以算出 $\Delta\theta_c=0.05$ mrad,而 $\Delta\theta_d=0.2\times 0.6=0.12$ mrad,所以我们实验装置的最小位相失配角

$$\Delta\theta_{min}=\Delta\theta_d=0.12\text{ mrad},$$

最大位相失配角是

$$\Delta\theta_{max}=\Delta\theta_d+\Delta\theta_c=0.17\text{ mrad}.$$

由于旋转调节误差,倍频晶体o轴与和频晶体e轴的对准误差为 $0.5^\circ$ ,偏振角的调节误差约为 $1^\circ$ 。

表4 晶体调整架参数

调节方向	读数精度	调节误差
左右	0.145 mrad	0.136 mrad
俯仰	0.145 mrad	0.036 mrad
旋转	$5^\circ$	$0.5^\circ$

光能损耗主要来自晶体表面及其窗口的反射损耗(表3)和基波光的吸收(表1)。估算得到反射损耗约使效率下降34.5%左右<sup>[2]</sup>。这和实验结果(最大效率下降32%)相符合。

序列脉冲效应是指由于一串峰值功率密度不等的脉冲造成总的转换效率相对于中心脉冲转换效率的下降。在实验中,序列脉冲个数是9。用洛伦兹曲线近似序列脉冲包络,计算得到序列脉冲效应约使效率下降16%左右( $\Delta\theta=0.17$ mrad)<sup>[2]</sup>。实验结果是最大三倍频效率下降20%以上。

其它影响三倍频效率的因素,象光孔效应、光波的退偏振、带宽、温度对位相匹配角的影响等等,在计算中均予以忽略。

将以上效应,代入三波耦合方程中去<sup>[2]</sup>,并用计算机求其数值解,就得到了在高斯脉冲激光入射时的各种效率曲线(图8~11)。计算中,我们认为两块晶体的位相失配角是相等的。

### 四、实验结果

实验装置的示意图见图7,其中晶体14是按图2的装置形式放置的,1/2波片用于调节偏振方向。测量用的三块半反镜(13、15、16)的透射率都已标定,并在数据处理时扣去了它们的影响。实验中效率的计算公式为:



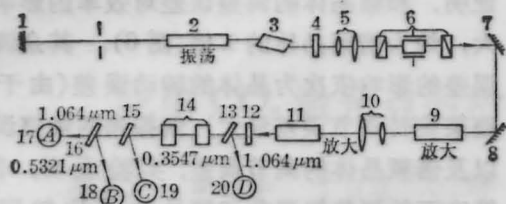


图7 实验装置

1, 7, 8-全反镜; 2, 9, 11-Nd:YAG 晶体; 3-声光调制器; 4-激光输出镜; 5, 10-扩孔; 6-选脉冲开关; 12-半波片; 13, 15, 16-半反镜; 14-三倍频装置; 17, 18, 19, 20-能量探测器

$$\eta_l^0 = W_c / (W_A + W_B + W_c)$$

$$\eta_t = W_c / 9W_D \quad (2)$$

$W_A$ 、 $W_B$ 、 $W_c$ 、 $W_D$  分别是对应的炭斗测得的能量。 $\eta_t$  是三倍频效率， $\eta_l^0$  是忽略了反射损耗以后的三倍频效率。因子 9 是由于半反镜 13 的反射率为 10% 所引起的。

实验结果与理论估算符合得很好，在单脉冲入射并忽略反射损耗时，最大倍频效率 ( $\theta_p = 45^\circ$ ) 达到 76% (图 8)，最大三倍频效率 ( $\theta_p = 36^\circ$ )  $\eta_l^0$  达到 52.1% (图 9)，对应的倍频效率为 51.2% (图 8)，这时入射光功率密度在  $1 \text{ GW/cm}^2$  以上，重复测量误差小于 6%。考虑反射损耗以后，最大三倍频效率  $\eta_t = 35.5\%$ ，重复测量的误差小于 10%。其中  $1.06 \mu\text{m}$  激光的最大功率 300 MW， $0.3547 \mu\text{m}$  紫外激光的最大功率为 44 MW (在入射光强为  $4 \text{ GW/cm}^2$  左右时)。

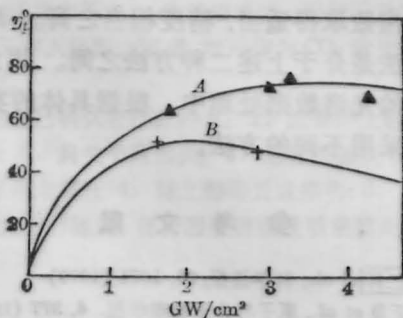


图8 忽略反射损耗时，倍频效率的理论曲线和实验结果的比较  
A- $\theta_p = 45^\circ$ ; B- $\theta_p = 36^\circ$

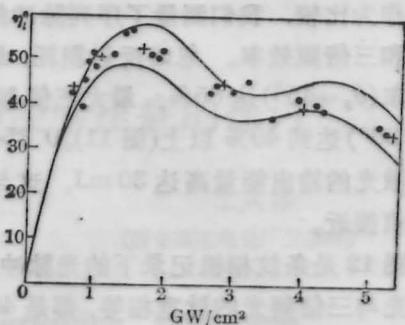


图9 忽略反射损耗时，三倍频效率的理论曲线和实验结果的比较  
+—平均值; ●—实验值

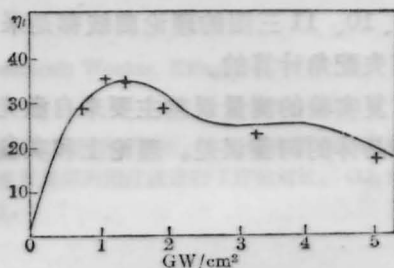


图10 三倍频能量转换效率的理论曲线和实验结果的比较

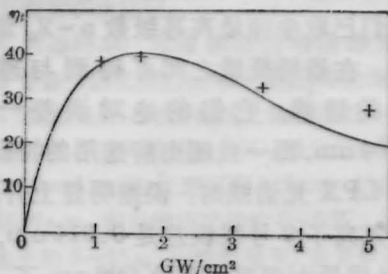


图11 忽略反射损耗时，序列脉冲激光入射时的三倍频效率的理论曲线和实验结果的比较

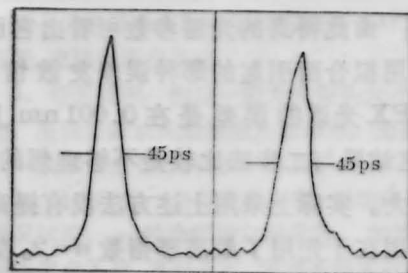


图12 脉冲形状，由条纹相机记录  
左图是倍频光脉冲，右图是三倍频光脉冲

作为比较,我们测量了序列脉冲的最大倍频和三倍频效率。忽略反射损耗,最大倍频效率( $\theta_p=45^\circ$ )达65%,最大三倍频效率( $\theta_p=36^\circ$ )达到40%以上(图11)。0.3547  $\mu\text{m}$  紫外激光的输出能量高达30 mJ,这与理论计算值接近。

图12是条纹相机记录下的光脉冲形状,倍频光与三倍频光的脉宽相等,都是45 ps。

图9中,上曲线是没有考虑调整误差时的理论效率曲线,下曲线是考虑了调整误差以后的曲线,大部分实验测量值都在两曲线之间,这说明理论预测是成功的。除去图9,其余8、10、11三图的理论曲线都是采用最大位相失配角计算的。

重复实验的测量误差主要来自激光器的波动和晶体的调整误差。理论上和实验中都

证明,和频晶体的调整误差对效率的影响最大,约为倍频晶体的1倍(图6)。其余调整误差的影响依次为晶体的转动误差(由于调整架旋转调节误差最大)、偏振角的调整误差以及倍频晶体的调节误差,实验表明,表4精度下的调整架调节和频晶体是比较困难的。

衷心感谢董景元、陆雨田在脉冲测量以及其它方面给予的大力帮助;衷心感谢钱林兴、赵隆兴在激光电源上给予的大力帮助。

### 参 考 文 献

- 1 W. Seka *et al.*, *Opt. Commun.*, **34**, 474 (1980)
- 2 许伟民,何慧娟,三倍频效率的模拟计算,待发表
- 3 天津大学精仪系,“精密机械零件”,下册(人民教育出版社,1979), p. 121

(上接第152页)

对整个砷化镓 LPX 光谱进行处理(见表1)。这里我们已取牛顿最高幂级数  $n=2$ 。结果分析发现,在谱特征线之间可得到与理论极为一致的谱线,它们的绝对误差一般在  $\pm 0.0004 \text{ nm}$ ,而一旦超出所选用的特征线外推其它 LPX 光谱线时,误差明显上升,如对砷的类氦离子 9 号线误差是  $0.014 \text{ nm}$ ,而到了 11 号线最大误差已是  $0.026 \text{ nm}$  了。为了改进拟合法这种缺点,本文也采用了常规法与拟合法合成的方法,这时会有更多更广的特征线;由此得到的光谱参数可看出它已避免了单用拟合而引起的那种误差发散情况。整个 LPX 光谱的误差是在  $0.001 \text{ nm}$  上下浮动。这结果与二步法比较是不够理想的,且工作量大。实际上采用上述方法没有提高精度的原因在于先用了最高幂指数  $n=2$ 。如果提高函数  $f(x) = \sum_1^n a_i x^i$  的幂指数  $n$  值并使其与特征线条数相同,则在常规法的基础上

采用牛顿拟合函数  $f(x)$  来推断整个砷化镓 LPX 的光谱波长与位置的关系,所得到的光谱精度大大提高。如当  $n$  值取 4 时,光谱的最大绝对误差在  $\pm 0.0003 \text{ nm}$  之间,最大相对误差是  $0.03\%$ 。

综合上述各种方法的分析和比较,可得出一步法比较简单易算,但得到的光谱精度不高。拟合法虽然在处理上比较繁琐,但只要幂指数取得适当,精度相当之高。而所谓二步法是介于上述二种方法之间。因此,在具体的光谱数据处理中,根据具体的实验要求可采用不同的方法。

### 参 考 文 献

- 1 卢仁祥 *et al.*, *科学通报*, **24**, 1071 (1979)
- 2 张正泉 *et al.*, *原子与分子物理学报*, **4**, 377 (1987)
- 3 V. A. Bockio *et al.*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.*, **19**, 11 (1978)
- 4 易大义 *et al.*, “数值方法”(浙江科学技术出版社,1984), p. 113