

文章编号: 0258-7025(2006)Supplement-0115-05

# 超高强度掺钛蓝宝石飞秒脉冲的二倍频

李 琨<sup>1</sup>, 张 彬<sup>1</sup>, 朱启华<sup>2</sup>, 黄小军<sup>2</sup>

<sup>1</sup>四川大学电子信息学院, 四川 成都 610064

<sup>2</sup>中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900

**摘要** 针对高强度飞秒脉冲, 详细讨论了采用 KDP 晶体的 I 类及 II 类二倍频过程中提高二倍频转换效率的方法。研究表明, 群速度失配会导致二倍频光脉冲宽度的增大和转换效率的降低, 非线性相位调制使二倍频光脉冲形状发生畸变, 降低转换效率。针对 I 类二倍频, 采用适当的初始空间相位失配, 对由自相位调制及交叉相位调制引起的转换效率的下降有一定的补偿作用; 针对 II 类二倍频, 对入射基频 e 光采取适当的时间预延迟, 可有效增大转换效率并抑制二倍频光脉冲的展宽。

**关键词** 非线性光学; 二倍频; 飞秒脉冲; 群速度失配; 自相位调制; 交叉相位调制

**中图分类号** O437.1 **文献标识码** A

## Efficient Second Harmonic Generation of Ultra Intense Femtosecond Ti:Sapphire Laser

LI Kun<sup>1</sup>, ZHANG Bin<sup>1</sup>, ZHU Qi-hua<sup>2</sup>, HUANG Xiao-jun<sup>2</sup>

<sup>1</sup> School of Electronic Information, Sichuan University, Chengdu, Sicuan 610064, China

<sup>2</sup> Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China

**Abstract** The methods for increasing the conversion efficiency of the type I and type II second harmonic generation with KDP crystal for the ultra intense femtosecond laser pulse have been discussed in detail. The results show that group-velocity mismatching is the main reason of the broadening of the second harmonic pulse and could lead to the decrement of conversion efficiency. The effects of nonlinear phase-modulation cause the distortion of the shape of the second harmonic pulse and also decrease the conversion efficiency. For the type I second harmonic generation, the proper spatial phase-mismatching can be helpful in compensation for the decrement of the conversion efficiency caused by the self- and cross-phase-modulation. For the type II second harmonic generation, the proper time predelay to the incident fundamental extraordinary pulse can efficiently increase the conversion efficiency, and also restrain the broadening of second harmonic pulse.

**Key words** nonlinear optics; second harmonic generation; femtosecond laser pulse; group-velocity mismatching; self-phase modulation; cross-phase modulation

### 1 引 言

短波长、超高强度飞秒脉冲作为快点火方案的惯性约束核聚变<sup>[1]</sup>的驱动光源、紫外探针<sup>[2]</sup>等技术的光源, 有着非常重要的作用。由于目前的高功率、高能量固体激光器的输出激光波长基本上均处于近红外波段, 通常只能通过非线性频率转换的方式获得高功率紫外激光。然而, 对于峰值光强为数百  $\text{GW}/\text{cm}^2$  至  $\text{TW}/\text{cm}^2$  量级的飞秒脉冲, 群速度失配的影响会导致倍频光的脉冲宽度增大; 自相位调制 (SPM)、交叉相位调制 (XPM) 引入的附加相位失配

会显著降低转换效率并导致光谱展宽和畸变。因此, 必须采取一定措施<sup>[3~5]</sup>, 提高飞秒脉冲倍频的效率, 并抑制倍频光脉冲的展宽和畸变。本文针对脉冲宽度约 60 fs。峰值光强为  $0.4\sim 1 \text{ TW}/\text{cm}^2$  的超高强度掺钛蓝宝石飞秒脉冲, 分别对采用 KDP 晶体的 I 类及 II 类角度失谐匹配方式的二倍频过程进行了理论研究, 对影响二倍频光转换效率及脉冲波形的主要因素进行了分析, 并提出了相应的优化方法。在此基础上, 针对 KDP 晶体超高强度飞秒脉冲二倍频进行了实验研究。

**基金项目:** 四川省青年科技基金(05ZQ026-013)、四川省学术和技术带头人培养基金项目(2200306)、超强超短脉冲激光应用基础研究实验室开放课题(CD200508)资助课题。

**作者简介:** 李 琨(1980—), 女, 四川大学电子信息学院博士研究生, 主要从事激光物理和技术方面的研究。

E-mail: anryco@sohu.com

## 2 高强度飞秒脉冲二倍频的理论模型

二倍频的耦合波方程组可表示为<sup>[6]</sup>

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial A_1}{\partial z} &= \frac{1}{v_{g1}} \frac{\partial A_1}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial t^2} + \frac{i}{2k_1} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) A_1 + \\
 &\quad \frac{i\omega_1}{n_1 c} \left[ d_{\text{eff}} A_2^* A_3 \exp(i\Delta k z) + \frac{3C_1^{\text{SPM}}}{2} |A_1|^2 A_1 + 3C_1^{\text{XPM}} |A_3|^2 A_1 \right] - \frac{\alpha_1}{2} A_1, \\
 \frac{\partial A_2}{\partial z} &= -\frac{1}{v_{g2}} \frac{\partial A_2}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial t^2} + \frac{i}{2k_2} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) A_2 - \rho_2 \frac{\partial A_2}{\partial y} + \\
 &\quad \frac{i\omega_2}{n_2 c} \left[ d_{\text{eff}} A_1^* A_3 \exp(i\Delta k z) + \frac{3C_2^{\text{SPM}}}{2} |A_2|^2 A_2 + 3C_2^{\text{XPM}} |A_3|^2 A_2 \right] - \frac{\alpha_2}{2} A_2, \\
 \frac{\partial A_3}{\partial z} &= -\frac{1}{v_{g3}} \frac{\partial A_3}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_3 \frac{\partial^2 A_3}{\partial t^2} + \frac{i}{2k_3} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) A_3 - \rho_3 \frac{\partial A_3}{\partial y} + \\
 &\quad \frac{i\omega_3}{n_3 c} \left[ d_{\text{eff}} A_1 A_2 \exp(-i\Delta k z) + \frac{3C_3^{\text{SPM}}}{2} |A_3|^2 A_3 + 3C_3^{\text{XPM}} |A_1|^2 A_3 + 3C_3^{\text{XPM}} |A_2|^2 A_3 \right] - \frac{\alpha_3}{2} A_3,
 \end{aligned} \tag{1}$$

式中  $A_j$  为光场复振幅 ( $j = 1, 2, 3$ );  $1/v_{gj} = (dk_j/d\omega)_{\omega=\omega_j}$ ,  $v_{gj}$  为群速度;  $\Delta k$  为相位失配量;  $i$  为虚数单位;  $\beta_j = (d^2 k_j/d\omega^2)_{\omega=\omega_j}$  为群速度色散系数;  $\rho_j$  为 e 光的走离系数;  $c$  为真空中的光速;  $d_{\text{eff}}$  为二阶有效非线性系数: 对于 I 类匹配的 KDP 晶体  $d_{\text{eff}} = -d_{36} \sin \theta \sin(2\Phi)$ ,  $d_{36} = 0.39 \text{ pm/V}$ ,  $\theta, \Phi$  分别为相位匹配角及方位角, 对于 II 类匹配的 KDP 晶体  $d_{\text{eff}} = d_{36} \sin(2\theta) \cos(2\Phi)$ ;  $C_j^{\text{SPM}}, C_j^{\text{XPM}}$  分别为自相位调制系数和交叉相位调制系数;  $\alpha_j$  为晶体吸收系数。对于 I 类二倍频, 耦合波方程组的初始条件为:  $A_j = (2I_j/c\epsilon_0)^{1/2}$ ,  $I_1 = I_2 = I_0/2$ ,  $I_3 = 0$ ,  $I_0$  为总的基频光强。对于 II 类二倍频, 耦合波方程组的初始条件为:  $A_1 = A_0 \sin(\theta_p)$ ,  $A_2 = A_0 \cos(\theta_p)$ ,  $A_3 = 0$ ,  $\theta_p$  为偏振角度。

## 3 数值计算结果及分析

采用分步离散傅里叶变换及四阶 Rung-Kutta 算法<sup>[7]</sup>, 对描述超高强度飞秒脉冲的二次谐波转换

过程的耦合波方程组(1)进行数值模拟计算。计算中, 假设入射基频光的空间分布为平面波, 时间波形为高斯脉冲, 即:  $A = A_0 \exp(-t^2/\tau^2)$ 。晶体的非线性折射率为

$$n = n_0 + \frac{\chi^{(3)} |A|^2}{2n_0} = n_0 + \frac{\chi^{(3)} I}{n_0^2 c \epsilon_0} = n_0 + \gamma I,$$

$\chi^{(3)}$  为有效三阶非线性系数,  $\gamma$  是与三阶非线性效应相关的物理量<sup>[3]</sup>。自相位和交叉相位调制系数为<sup>[6]</sup>

$$C^{\text{SPM}} = C^{\text{XPM}} = \chi^{(3)} = \frac{\epsilon_0 n_0^2 \gamma}{3}. \tag{2}$$

对于 KDP 晶体的三阶非线性系数及非线性折射率, 许多文献给出了不同的理论及实验测量值<sup>[6, 8~10]</sup>。本文的模拟计算中, 采用 T. Ditmire 等<sup>[4]</sup>估算的  $\gamma$  值, 并由(2)式计算得到基频光、二倍频光的自相位调制及交叉相位调制系数。计算中, 假设基频光脉冲宽度  $\tau = 50 \text{ fs}$  (半峰全宽约为  $60 \text{ fs}$ )。

图 1 给出了失谐角为 0 时, 不同入射基频光条件下, 二倍频转换效率随晶体厚度的变化, 图 1(a) 为 I 类

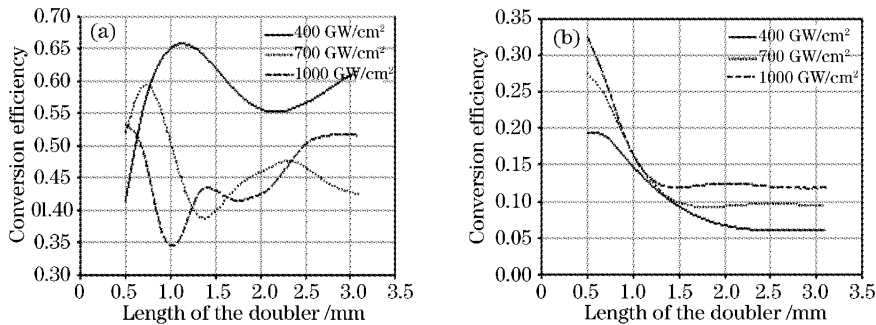


图 1 不同入射基频光条件下, 二倍频转换效率随晶体厚度及入射基频光强的变化。(a) I 类二倍频; (b) II 类二倍频

Fig. 1 Conversion efficiency of the  $2\omega$  field versus the length of the doubler and the intensity of the input  $1\omega$  field. (a) Type I second harmonic generation; (b) type II second harmonic generation

二倍频;图 1(b)为 II 类二倍频。比较图 1(a),(b)可见,晶体厚度在 0.5~3.0 mm 范围内时,采用 II 类二倍频的转换效率比 I 类二倍频低很多;I 类二倍频的转换效率随晶体厚度的增大呈现大小起伏的变化趋势,并且,入射基频光强较小(例如,400 GW/cm<sup>2</sup>)时的转换效率较大;而 II 类二倍频的转换效率随晶体厚度的增大先减小后趋于稳定。

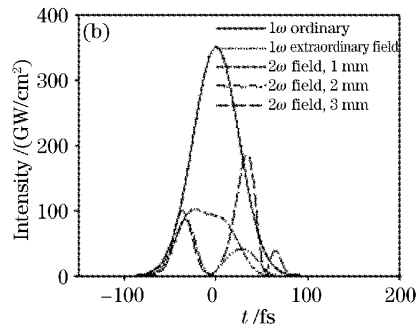
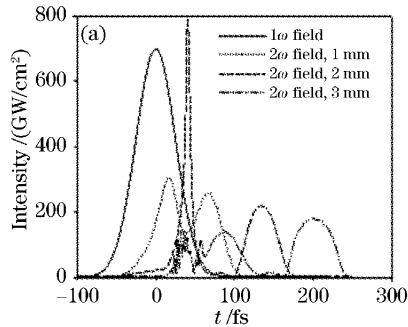


图 2 基频光及不同晶体厚度时得到的二倍频光的时间波形。(a)I 类二倍频;(b)II 类二倍频  
Fig. 2 Pulse shapes of the input  $1\omega$  field and the  $2\omega$  field with different length of the doubler.

(a) Type I second harmonic generation; (b) type II second harmonic generation

对于 I 类二倍频,随着晶体厚度的增大,二倍频光脉冲宽度将增大。同时,由于入射基频光为高斯脉冲,脉冲峰值附近由于光强较大,受三阶非线性相位调制(SPM, XPM)的影响也较大,从而导致二倍频光的时间脉冲发生分裂以及脉冲形状发生畸变。对于 II 类二倍频,基频 o 光与基频 e 光的群速度失配较大,此时,  $1/v_{g1e} - 1/v_{g1o} = -1.534 \times 10^{-12}$  s/cm,因此,对于脉宽为 60 fs 的入射基频光,基频 o 光与基频 e 光相互作用的有效距离很短,二倍频转换效率较低,并且转换效率随着晶体厚度的增大下降很快。此外,基频 o 光与二倍频 e 光之间的群速度失配很小,即  $1/v_{g2e} - 1/v_{g1o} = 5.870 \times 10^{-14}$  s/cm,因此,二倍频光相对基频 o 光的走离较小,脉冲宽度随晶体厚度的变化也很小。

图 3 为采用 I 类二倍频、晶体厚度为 1 mm,不同入射基频光强情况下,二倍频光转换效率随晶体失谐角的变化曲线。图 4 为采用 I 类二倍频,入射基频光强为 700 GW/cm<sup>2</sup>,失谐角为 2.5 mrad,入射基频光及晶体厚度分别为 1 mm,2 mm,3 mm 时的二倍频光的时间波形。从图 3 和图 4 可以看出,采用初始空间相位失配的方法,对 I 类二倍频的转换效率及二倍频光时间波形均有明显的优化作用。例如,当晶体厚度为 1 mm,入射基频光为 700 GW/cm<sup>2</sup>,失谐角为 2.5 mrad 时的转换效率为 76%,与失谐角为 0 时相比增大了 25%;晶体厚度为 1 mm,入射基频

图 2 给出了失谐角为 0,入射基频光强为 700 GW/cm<sup>2</sup>时,入射基频光及不同晶体厚度情况下得到的二倍频光的时间波形,图 2(a)为 I 类二倍频;图 2(b)为 II 类二倍频。比较图 2(a),(b)可知,随着晶体厚度的增加,由 I 类二倍频得到的二倍频光脉冲宽度明显展宽,而采用 II 类二倍频时,二倍频光的脉冲宽度则变化较小。

光为 1 TW/cm<sup>2</sup>,失谐角为 3.2 mrad 时的转换效率为 73%,与失谐角为 0 时相比增大了 38%。此外,

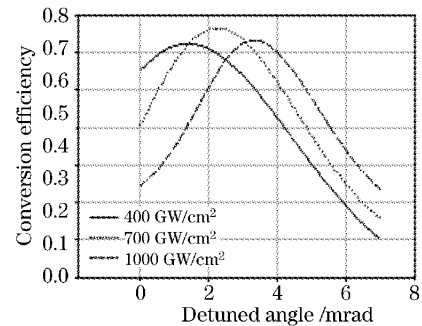


图 3 二倍频光转换效率随晶体失谐角的变化  
Fig. 3 Conversion efficiency of the  $2\omega$  field versus the detuned angle and the intensity of the input  $1\omega$  field

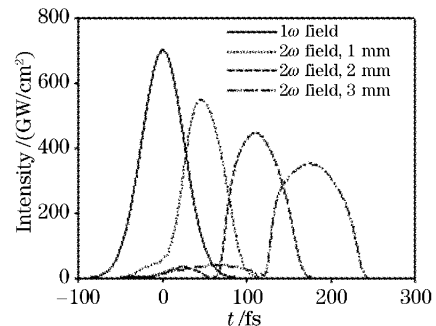


图 4 不同晶体厚度时得到的二倍频光时间波形  
Fig. 4 Pulse shapes of the input  $1\omega$  field and the  $2\omega$  fields with different length of doubler

进一步分析图 3 可知,入射基频光强越大,获得最大转换效率时所需要采用的失谐角也越大。这是由于随着入射基频光强度的增大,非线性折射率引起的自相位调制和交叉相位调制的影响随之增大的缘故。具体来说,二倍频过程中相位失配  $\Delta\phi(z)$  可表示为

$$\begin{aligned} \Delta\phi(z) &= \left( \frac{2\pi}{\lambda_{2e}} n_{2e} - 2 \times \frac{2\pi}{\lambda_{1o}} n_{1o} \right) z = \\ &= \frac{2\pi}{\lambda_{2e}} \left[ n_{2e,L}(\theta) + \sum_j \gamma_{2j} I_j(z) \right] z - \\ &= 2 \times \frac{2\pi}{\lambda_{1o}} \left[ n_{1o,L} + \sum_j \gamma_{1j} I_j(z) \right] z = \\ &= \Delta\phi_L(\theta, z) + \Delta\phi_{NL}(z), \end{aligned} \quad (3)$$

式中,  $\Delta\phi_L(\theta, z) = \Delta\phi_L(\theta_m, z) + \Delta\phi_L(\Delta\theta, z)$  为线性折射率引起的相位失配,  $\Delta\phi_{NL}(z)$  为非线性折射率引起的相位失配,与三阶非线性效应引起的非线性折射率  $\gamma$  相关。对于中心频率,  $\Delta\phi_L(\theta_m, z) = 0$ , 总的相位失配为:  $\Delta\phi(z) = \Delta\phi_L(\Delta\theta, z) + \Delta\phi_{NL}(z)$ 。选择合适的相位失配角  $\Delta\theta$ , 使中心频率  $\Delta\phi_{NL}(z) = -\Delta\phi_L(\Delta\theta, z)$ , 则  $\Delta\phi(z) = 0$ 。由此可见,选择适当的失谐角可以补偿由非线性相位失配引起的转换效率降低,并且,入射基频光强越大,达到最大转换效率时所需要采用的失谐角越大。

图 5 为采用 II 类二倍频,晶体厚度为 1 mm,不同入射基频光强情况下,二倍频光转换效率随基频 e 光预延迟时间的变化曲线。图 6 为采用 II 类二倍频,入射基频光强为 700 GW/cm<sup>2</sup>,基频 e 光预延迟 90 fs,入射基频 e 光, o 光及晶体厚度分别为 1 mm, 2 mm, 3 mm 时的二倍频光的时间波形。

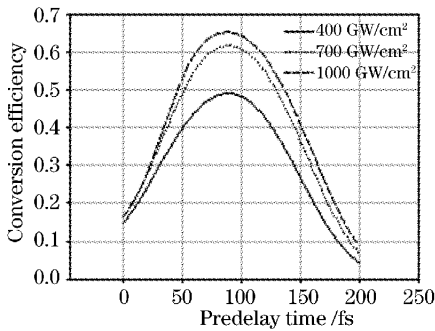


图 5 二倍频光转换效率随基频 e 光预延迟时间的变化  
Fig. 5 Conversion efficiency of the 2 $\omega$  field versus the predelay time of the 1 $\omega$  extraordinary field

由图 5 可见,对于 II 类二倍频,通过对基频 e 光进行时间预延迟的方法,可有效地补偿群速度走离, e 光与 o 光出射晶体的时间差异减小了,等效于增大了基频 e 光和 o 光在晶体内的相互耦合作用时间

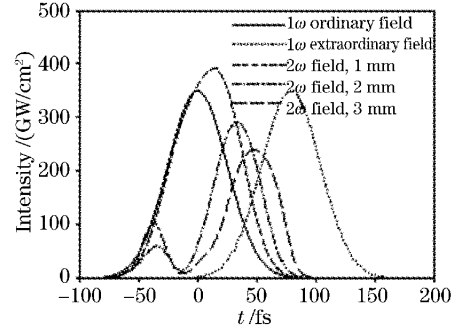


图 6 基频 e 光预延迟 90 fs 时,基频光及二倍频光的时间波形

Fig. 6 Pulse shapes of the input 1 $\omega$  fields and the 2 $\omega$  fields with predelay time of 90 fs

和距离,从而有效地提高二倍频转换效率。例如,对基频 e 光时间预延迟 90 fs,入射基频光强分别为 400 GW/cm<sup>2</sup>, 700 GW/cm<sup>2</sup>, 1000 GW/cm<sup>2</sup> 时,二倍频光转换效率分别为 49%, 61% 和 65%,比不加时间预延迟时的转换效率分别提高了约 30%, 42% 和 46%。对于晶体厚度  $L=1$  mm 时,基频 e 光与 o 光因群速度不同造成两光束到达晶体末端的时间差异为  $\Delta t = L \times (1/v_{g,1e} - 1/v_{g,1o}) \approx -153$  fs。对基频 e 光进行适当的预延迟,当基频 e 光与 o 光出射晶体的时间差异  $\Delta t' = |L/v_{g,1e} + t_{pre} - L/v_{g,1o}| \approx \tau$  (即  $t_{pre} \approx \tau - \Delta t = 93$  fs) 时,基频 e 光与 o 光可最为有效地相互作用,此时的转换效率将明显提高。

为了验证 KDP 晶体用于超高强度飞秒脉冲倍频的可行性,我们在中国工程物理研究院激光聚变研究中心的 SILEX-I 系统上进行了实验,估测 KDP 晶体以及粘胶(用于粘合玻璃衬底与倍频晶体)的光损伤阈值。实验中用到的 KDP 晶体厚度为 1.0 mm,直径为 5.0 cm。实验结果表明,对于脉冲宽度约 80 fs,峰值光强 0.4~1 TW/cm<sup>2</sup> 左右的基频光,粘胶的光损伤阈值(光脉冲辐照 10 次)为 1 TW/cm<sup>2</sup> 左右, KDP 晶体的损伤阈值更高。此外,还开展了飞秒脉冲 KDP 晶体的二倍频实验研究。输入基频光脉冲宽度约为 30 fs,能量为 20~150 mJ 时,输出二倍频光的最大能量为 13 mJ。

## 4 结 论

在超高强度飞秒脉冲的二倍频过程中,群速度失配以及由自相位调制和交叉相位调制导致的非线性相位失配是引起二倍频光转换效率下降、脉冲展宽及时间波形发生畸变的主要因素。对于 I 类二倍

频方案,采用初始空间相位失配的方法来补偿非线性相位失配,可有效地提高转换效率同时优化二倍频光时间波形,对于 II 类二倍频方案,对基频 e 光采用时间预延迟的方法,可有效补偿基频 o 光,e 光之间的群速度失配,在很大程度上提高二倍频转换效率,并抑制二倍频光脉冲的展宽。此外,初步实验结果表明,对于脉冲宽度约 80 fs,峰值光强  $0.4 \sim 1 \text{ TW/cm}^2$  左右的基频光,采用 KDP 晶体进行倍频时,晶体不会被损伤。输入基频光脉冲宽度约为 30 fs,能量为 20~150 mJ 时,输出二倍频光的最大能量为 13 mJ。

### 参 考 文 献

- 1 Zhang Jiatai, He Bin, He Xiantu *et al.*. Study on the mechanism of the fast ignition in laser fusion [J]. *Acta Physica Sinica*, 2001, **50**(5): 921~925  
张家泰,何 斌,贺贤士等. 激光聚变快点火机理研究 [J]. *物理学报*, 2001, **50**(5): 921~925
- 2 Peng Nengling, Li Wenhong, Jiang Shaoen *et al.*. Holographic interferometry of plasma electron density diagnosis [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2002, **14**(2): 254~256  
彭能岭,李文洪,江少恩等. 等离子体电子密度诊断的全息干涉法 [J]. *强激光与粒子束*, 2002, **14**(2): 254~256
- 3 Iida A. Begishev, Mikhail Kalashnikov, Vladimir Karpov *et al.*. Limitation of second-harmonic generation of femtosecond Ti:sapphire laser pulses [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004, **21**(2): 318~322
- 4 T. Ditmire, A. M. Rubenchik, D. Eimerl *et al.*. Effects of cubic nonlinearity on frequency doubling of high-power laser pulses [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(4): 649~655
- 5 C. Radzewicz, Y. B. Band, G. W. Pearson *et al.*. Short pulse nonlinear frequency conversion without group-velocity-mismatch broadening [J]. *Opt. Commun.*, 1995, **117**: 295~302
- 6 P. S. Banks, M. D. Feit, M. D. Perry. High-intensity third-harmonic generation [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, **19**(1): 102~118
- 7 Lü Tiezheng, Wang Tao, Qian Liejia *et al.*. Calculation of frequency doubling efficiency of femtosecond pulses in BBO crystals [J]. *Acta Physica Sinica*, 2002, **51**(6): 1268~1271  
吕铁铮,王 韬,钱列加等. 飞秒激光在 BBO 晶体中倍频效率的数值计算 [J]. *物理学报*, 2002, **51**(6): 1268~1271
- 8 R. A. Ganeev, I. A. Kulagin, A. I. Rysnyansky *et al.*. Characterization of nonlinear optical parameters of KDP, LiNbO<sub>3</sub> and BBO crystals [J]. *Opt. Commun.*, 2004, **229**: 403~412
- 9 D. Eimerl. Electro-optic, linear, and nonlinear optical properties of KDP and its isomorphs [J]. *Ferroelectrics*, 1987, **72**: 95~139
- 10 Ilya A. Kulagin, Rashid A. Ganeev, Valery A. Kim *et al.*. Nonlinear refractive indices and third-order susceptibilities of nonlinear-optical crystals [C]. *SPIE*, 2003, **4972**: 182~189