

会聚光束  $F$  数对四倍频效率的影响及提升技术

柴向旭, 李平, 冯斌\*, 王芳, 郑奎兴, 李富全, 朱启华, 王礼权, 王冠中

中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900

**摘要** 高功率激光装置中将熔石英透镜置于四倍频晶体之前可有效降低熔石英元件的损伤概率, 而实现会聚光束高效倍频是该方案急需解决的瓶颈问题。本文基于非临界相位匹配 DKDP 晶体系统研究了会聚光束  $F$  数对其四倍频效率的影响。研究发现系统  $F \leq 30$  时四倍频效率下降显著, 会聚光束四倍频最佳匹配温度随  $F$  数和入射激光强度增加而增大; 另外, 系统  $F \leq 20$  时的四倍频的温度及波长接收带宽显著增加。在此基础上, 本文提出了光束分割、温度梯度分布及晶体氘含量梯度分布的方法提升会聚光束四倍频效率, 会使会聚光束四倍频效率可达 80% 以上。该研究有助于解决熔石英透镜前置方案的局限性。

**关键词** 非线性光学; 四倍频; 会聚光束;  $F$  数; 相位匹配; 频率转换效率

中图分类号 O437 文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.0908001

## 1 引言

近年来, 基于激光惯性约束聚变(ICF)和高能量密度科学等领域的强劲需求, 多国相继建立了能够输出极高功率的高功率激光装置, 如美国的国家点火装置(NIF)<sup>[1-4]</sup>。研究表明, 激光波长越短越有利于提高激光与物质相互作用的耦合效率, 因此高功率激光装置中通常需将钨玻璃产生的红外光转化为短波长紫外光<sup>[5]</sup>。高功率紫外激光通过系统后续熔石英元件(聚焦透镜、真空窗口等)时, 极易导致熔石英元件损伤, 熔石英元件的紫外激光损伤成为制约高功率激光装置发展的瓶颈, 是影响装置长期稳定运行的关键<sup>[6-8]</sup>。熔石英元件的损伤性能强烈依赖于激光波长, 波长越短其损伤阈值越低<sup>[9]</sup>。综合权衡下目前高功率激光装置主要采用“先倍频后和频”的三倍频激光作为工作波长<sup>[1-4]</sup>。“两次倍频”的四次谐波转换(FHG)可将激光波长拓展至 263 nm, 更有利于提升激光的束靶耦合效率, 但四倍频激光辐照下熔石英元件的损伤将更为严重, 这限制了四倍频光束的应用范围<sup>[9-11]</sup>。目前, 四倍频光束主要应用在低功率激光系统, 例如法国 LULI 装置(单束能量约为 100 J)采用了四倍频激光进行

打靶<sup>[12]</sup>; ICF 激光装置中采用四倍频光作为汤姆孙散射探针光束用于诊断等离子体参数<sup>[13-14]</sup>。

若将紫外倍频晶体置于熔石英元件之后, 则可以使熔石英元件处于二倍频段, 大幅降低熔石英元件的损伤概率<sup>[9]</sup>。但该方案将会导致进入紫外倍频晶体的是会聚光束, 难以实现各点相位匹配, 倍频效率下降, 限制了该方案的工程应用。针对会聚光束三倍频, Chen 等<sup>[15]</sup>提出了非共线倍频的方法来提提高角度接收范围, 并在磷酸二氢钾(KDP)晶体中开展了验证实验。四倍频过程中泵浦光和倍频光共线, 采用非临界相位匹配可有效降低倍频过程中的光束走离效应和角度敏感性。20 世纪 70 年代, Bredikhin 等<sup>[16]</sup>提出了利用一定氘含量的磷酸二氘钾(DKDP)晶体作为四倍频晶体, 通过调节 DKDP 晶体氘含量, 可在 1010~1070 nm 范围内实现非临界相位匹配。2011 年美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室(LLNL)的研究人员利用质量分数 70% 氘化 DKDP 晶体在温度为 18.5 °C 下开展了非临界相位匹配实验, 获得了 79% 的四倍频转换效率<sup>[17]</sup>。此外, DKDP 晶体具有较大非线性系数、较宽的透光范围、较高损伤阈值、较低的横向受激拉曼散射增益系数和易于获得大尺寸单晶等优点<sup>[18]</sup>。因此, 采用非

收稿日期: 2020-08-20; 修回日期: 2020-10-05; 录用日期: 2020-11-02

基金项目: 国家自然科学基金(51902299)、中国工程物理研究院激光聚变研究中心青年人才基金(RCFPD4-2020-4)

\*E-mail: fengbincaep@163.com

临界相位匹配的 DKDP 晶体是实现大口径会聚光束高效四倍频的最优方案<sup>[19]</sup>。

会聚光束系统  $F$  数是影响会聚光束四倍频性能的关键参量,本课题组王芳等<sup>[19]</sup>重点研究了  $F$  数为 28 时的会聚光束四倍频效率。实际应用中会聚光束  $F$  数差异较大,且小  $F$  数系统的四倍频效率差异更为显著,因此会聚光束  $F$  数对四倍频效率的影响规律值得深入研究。本文基于非临界相位匹配 DKDP 晶体系统研究了会聚光束  $F$  数对四倍频效率的影响,并在此基础上提出了光束分割、温度梯度分布和晶体氘含量梯度分布的方法来进一步提升会聚光束四倍频效率。

## 2 理论模型

会聚光束四倍频光路如图 1(a)所示,基频光由钼玻璃产生,激光波长为 1053 nm( $\omega$ ),基频光束口径为

$a$ ,基频光束经过 KDP 晶体后转换为二倍频光( $2\omega$ ),四倍频晶体置于楔形透镜之后,聚焦透镜焦距为  $f$ ,会聚的  $2\omega$  光束进入四倍频 DKDP 晶体中转换为四倍频( $4\omega$ )光束聚焦至靶点,晶体处光束口径  $b$ ,该四倍频系统  $F$  数为  $F=f/a$ 。四倍频 DKDP 晶体切割示意图如图 1(b)所示,其中, $\theta=90^\circ$ , $\varphi=45^\circ$ ,此切型的 DKDP 晶体可实现非临界相位匹配。 $2\omega$  光束指向和 DKDP 晶体的位置关系如图 1(c)所示, $2\omega$  光束中心指向和四倍频 DKDP 晶体  $Z$  轴垂直,两侧光束指向对称分布,在四倍频敏感轴  $\theta$  方向  $2\omega$  光束指向沿  $Z$  轴连续变化,光束指向和晶体法线夹角表示为

$$\Delta\theta = \arctan[Z/(2bF)]. \quad (1)$$

对应的晶体内角为

$$\Delta\theta' = \arcsin(\sin\Delta\theta/n). \quad (2)$$

在非敏感轴  $\varphi$  方向二倍频光束指向沿着  $Y'$  轴连续变化,但该方向角度变化对效率影响不显著。

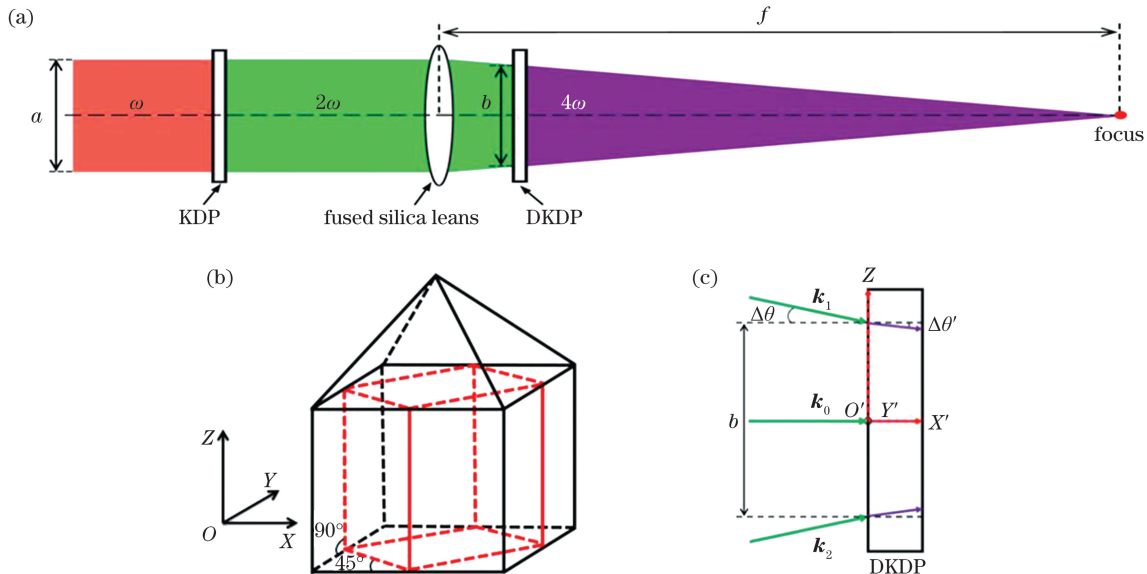


图 1 会聚光束四倍频光路。(a)会聚光束四倍频光路排布;(b)DKDP 晶体切割示意图;(c)二倍频会聚光束指向示意图  
Fig. 1 Convergent beam FHG optical path. (a)FHG scheme of a convergent beam; (b) cutting schematic diagram of DKDP crystal; (c) schematic diagram of convergent  $2\omega$  beam's direction

KDP 和完全氘化 DKDP 晶体的折射率可由 Sellimier 公式表示<sup>[20]</sup>为

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - E}, \quad (3)$$

式中: $A$ 、 $B$ 、 $C$ 、 $D$ 、 $E$  为参数,是温度  $T$  的函数。氘含量为  $x$  的 DKDP 晶体的折射率<sup>[21]</sup>为

$$n^2(x) = xn_{\text{DKDP}}^2 + (1-x)n_{\text{KDP}}^2, \quad (4)$$

式中: $n_{\text{DKDP}}$  为完全氘化 DKDP 晶体的折射率; $n_{\text{KDP}}$  为 KDP 晶体的折射率,根据晶体折射率椭球可以求得不同方向上的晶体折射率。综上可知,DKDP 晶体折射率是波长、角度、温度和氘含量的函数,表示为  $n_\lambda(\theta', T, x)$ 。对于 I 类倍频而言,倍频过程的耦合波方程<sup>[22-23]</sup>可表示为

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{i\omega_1}{n_1 c} d_{\text{eff}} A_2 A_1^* \exp(i\Delta k z) + \frac{i}{2k_1} \Delta_\perp^2 A_1 + i\omega_1 n_1 \epsilon_0 \left[ \frac{1}{2} \gamma_{11} |A_1|^2 A_1 + \gamma_{12} |A_2|^2 A_1 \right] - \frac{1}{2} \alpha_1 A_1, \quad (5)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega_2}{2n_2c} d_{\text{eff}} A_1 A_1 \exp(-i\Delta k z) + \frac{i}{2k_2} \Delta_{\perp}^2 A_2 - \rho \frac{\partial A_2}{\partial y} + i\omega_2 n_2 \epsilon_0 \left[ \gamma_{21} |A_1|^2 A_2 + \frac{1}{2} \gamma_{22} |A_2|^2 A_2 \right] - \frac{1}{2} \alpha_2 A_2, \quad (6)$$

式中:  $A_i$  为光场复振幅;  $A_i^*$  为光场复振幅的共轭;  $n_i$  为折射率;  $k_i$  为传播常数;  $\omega_i$  为基频光角频率;  $\epsilon_0$  为自由空间介电常数;  $c$  为真空中的光速;  $\rho$  为 e 光的走离系数;  $\alpha_i$  为晶体吸收系数;  $\Delta k$  为相位失配量;  $\gamma_{m,n}$  为非线性折射率系数;  $d_{\text{eff}}$  为有效非线性系数,  $d_{\text{eff}} = d_{36} \sin \theta \sin 2\varphi$ , 其中,  $d_{36} = 0.37 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ [24]。对于四倍频过程相位失配量可以表示为

$$\Delta k = k_4 - k_2 = [n_{4\omega}(\theta', T, x)\omega_4 - n_{2\omega}(\theta', T, x)\omega_2]/c. \quad (7)$$

DKDP 晶体尺寸设为  $360 \text{ mm} \times 360 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ , 晶体未镀膜, DKDP 晶体对四倍频光吸收较为显著, 吸收系数取  $0.08 \text{ cm}^{-1}$ [25]。DKDP 晶体处  $2\omega$  光束口径  $b=300 \text{ mm}$ , 光束呈 11 阶超高斯分布。非临界相位匹配条件下  $\Delta k=0$ , 由(7)式可知, 非临界相位匹配温度是氘含量的函数, 实验结果表明,  $T_{\text{NCPM}} = 7.8\lambda - 2.22x_{\text{NCPM}} - 8040.1$ [26]。大口径 DKDP 晶体中的横向受激拉曼散射(TSRS)将引起晶体损伤, 研究表明, 质量分数  $60\% \sim 70\%$  氘化 DKDP 晶体可有效抑制 TSRS 效应, 对应的  $T_{\text{NCPM}}$  为  $40.1 \sim 17.9 \text{ }^\circ\text{C}$ [27]。为了便于晶体温度控制, 设置为  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  较为适宜, 即  $T_{\text{NCPM}} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$ , 此时 DKDP 晶体的氘质量分数为  $64.5\%$ , 即  $x_{\text{NCPM}} = 64.5\%$ 。根据上述理论模型采用分步傅里叶变换和四阶龙

格-库塔算法对会聚光束四倍频过程进行模拟计算。

### 3 结果与分析

#### 3.1 会聚光束 $F$ 数对四倍频效率的影响

在非临界相位匹配条件下 DKDP 晶体中心位置点相位匹配, 在此条件下数值模拟了  $2\omega$  强度为  $1 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  时不同  $F$  数下的四倍频光束近场, 如图 2(a) 所示。晶体中心位置点附近四倍频光束平顶分布, 随  $F$  数增加平顶部分宽度快速增加并趋于定值; 当  $F \leq 20$  时, 光束近场边缘具有较强的强度调制, 倍频效率较低, 这是由该位置相位失配严重引起; 当  $F \geq 30$  时, 光束近场趋向于超高斯分布; 当  $F=40$  时, 四倍频效率达到平行光束四倍频效率的  $98.7\%$ ; 当  $F=100$  时, 超高斯阶次达到 10 阶。根据晶体折射率椭球可知, 当温度  $T > T_{\text{NCPM}}$  时, 晶体上各点均不能实现相位匹配; 当温度  $T < T_{\text{NCPM}}$  时, 晶体上非中心位置点可以实现相位匹配, 此时该点效率提升, 但中心位置点相位失配, 效率下降。图 2(b) 给出了  $F=5$  时不同温度下的四倍频光束近场, 可以看出, 随着温度降低中心位置点效率逐渐下降, 光束在非中心位置处形成两个峰值, 两峰的间距随着温度降低而逐渐增加, 最终的四倍频焦斑上将存在两个带状强区, 强区可通过调节温度实现位置变化。

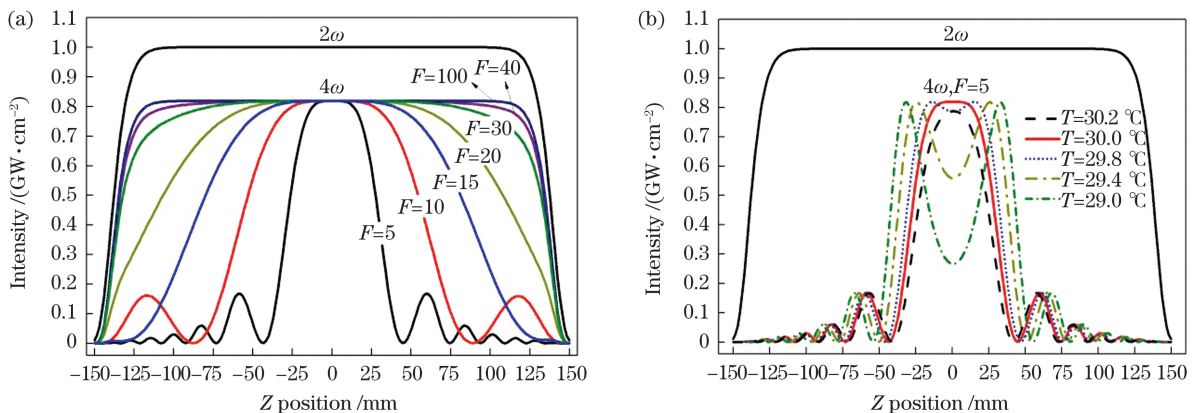
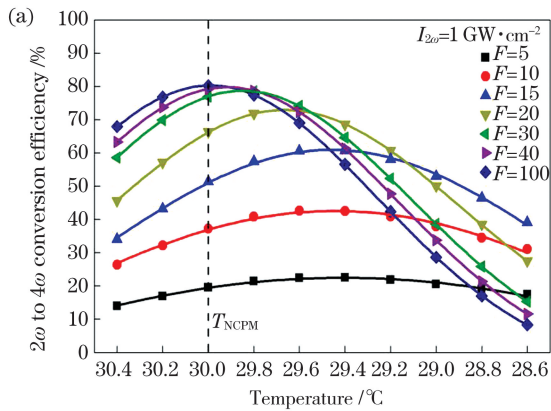


图 2 实验结果。(a)  $T = T_{\text{NCPM}}$  时不同  $F$  数下的四倍频光束近场分布; (b)  $F=5$ ,  $T \leq T_{\text{NCPM}}$  时四倍频光束近场分布  
Fig. 2 Experimental results. (a)  $4\omega$  near-field distributions at different  $F$  numbers at  $T = T_{\text{NCPM}}$ ; (b)  $4\omega$  near-field distribution at  $F=5$  and  $T \leq T_{\text{NCPM}}$

图 3(a) 列出了不同  $F$  数系统四倍频效率随温度变化曲线。与  $T_{\text{NCPM}} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$  时的四倍频效率相比, 当温度  $T > T_{\text{NCPM}}$  时, 四倍频效率下降; 当  $T <$

$T_{\text{NCPM}}$  时, 随着温度逐渐降低, 四倍频效率先增加后减小, 例如, 当  $F=5$ , 温度为  $29.45 \text{ }^\circ\text{C}$  时四倍频效率最高, 此时的温度为最佳匹配温度  $T_{\text{PM}}$ , 相比于

$T_{\text{NCPM}}$  时的四倍频效率提升了 3.2%。在最佳匹配温度  $T_{\text{PM}}$  下非中心位置点可以实现相位匹配,与  $T_{\text{NCPM}}$  下的四倍频相比,此时的相位失配总量有所降低,且最佳匹配温度  $T_{\text{PM}}$  随着  $F$  数增加而向  $T_{\text{NCPM}}$  收敛。另外,从图 3(a)可以看出,随着  $F$  数减小,四倍频效率对温度变化的敏感性降低,这是由于会聚光束四倍频时角度失配量和温度偏差引起的失配量存在叠加效应,角度失配量部分弥补了温度



失配量,导致小  $F$  数系统对温度敏感性降低。此外,会聚光束四倍频系统的最佳匹配温度还依赖于入射的  $2\omega$  光强度,图 3(b)为不同  $F$  数系统最佳匹配温度随  $2\omega$  光强度变化曲线。可以看出,最佳匹配温度随  $2\omega$  入射光强增加而增大,当  $F < 20$  时,  $T_{\text{PM}}$  随  $2\omega$  光强度呈非线性增长;当  $F \geq 20$  时,  $T_{\text{PM}}$  和  $2\omega$  光强度近似线性关系,且随着  $F$  数增加,  $T_{\text{PM}}$  随  $I_{2\omega}$  变化率降低。

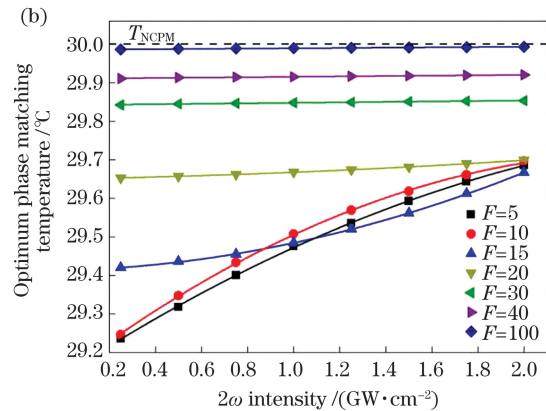


图 3 实验结果。(a)会聚光束四倍频转换效率随温度变化曲线;(b)不同  $F$  数最佳匹配温度随  $2\omega$  光强变化  
Fig. 3 Experimental results. (a) Dependence of convergent-beam FHG efficiency on temperature; (b) dependence of  $T_{\text{PM}}$  on  $2\omega$  beam intensity at different  $F$  numbers

根据以上结果,理论模拟了不同  $F$  数系统在最佳匹配温度下的四倍频效率随  $2\omega$  光强的变化,结果如图 4 所示。 $2\omega$  光强度小于  $0.5 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  时四倍频效率随  $2\omega$  光强度增加而快速增加;在  $2\omega$  光强度大于  $0.75 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  的区域,  $F \leq 10$  系统的四倍频效率逐渐趋于饱和,而  $F = 15 \sim 20$  时四倍频效率随着  $2\omega$  光强增加先缓慢增加后显著下降,  $F \geq 30$  系统的四倍频效率则随着  $2\omega$  光强增加而持续增加。根据倍频理论可知,四倍频过程中同时存在正转换( $2\omega \rightarrow 4\omega$ )和逆转换( $4\omega \rightarrow 2\omega$ ),低功率密度下

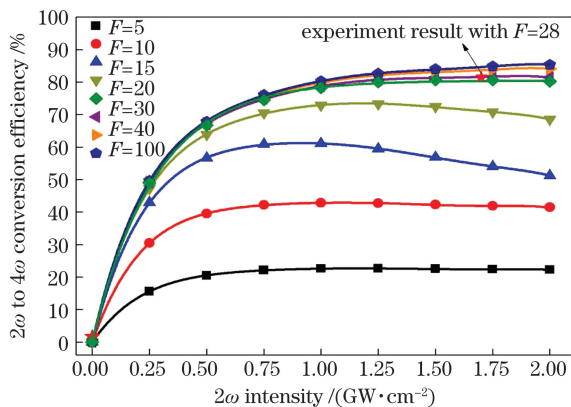


图 4 最佳匹配温度时会聚光束四倍频效率随  $2\omega$  光强变化  
Fig. 4 Dependence of FHG efficiency of convergent beam on  $2\omega$  beam intensity at  $T = T_{\text{PM}}$

正转换占主导,倍频效率随着功率密度增加而增加,高功率密度下逆转换逐渐增强,随着功率密度增加倍频效率出现下降。图 4 中  $F = 100$  时的四倍频效率随功率增加而增加,说明在  $2\omega$  光功率密度达到  $2 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  时倍频效率并未到拐点,因此  $2\omega$  光强大于  $0.75 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  区域  $F = 15 \sim 20$  时,效率出现显著下降并非由倍频过程中的逆转换引起。不同  $F$  数系统的四倍频效率增长特性是由其在晶体上的相位失配量  $\Delta k$  的分布决定,不同  $F$  数系统的  $\Delta k$  分布不同,根据倍频理论四倍频效率和  $\Delta k$  近似满足 sinc 函数,导致光束近场存在强度调制,倍频是非线性过程,这些强度调制对  $2\omega$  光强的响应有显著差异,最终导致四倍频效率随  $2\omega$  光强增长特性的差异。另外,在相同  $2\omega$  光强度下随着  $F$  数增加四倍频效率快速增加,  $F$  数到达 30 时四倍频效率增速下降,此时四倍频效率可达 80% 以上,本理论模型中晶体设为未镀膜,实际应用中晶体可作镀膜处理,四倍频效率将有所提升<sup>[28]</sup>。本课题组 Wang 等<sup>[19]</sup>在  $I_{2\omega} = 1.7 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ ,  $F = 28$  条件下实验测得 140 mm 口径会聚光束四倍频效率为 81.6%,实验中四倍频晶体进行了镀膜处理,相比于本文未镀膜情况下的理论值提升了约 1%。

另外,实际应用中入射光波长通常有一定宽度,

例如高功率激光装置中为了抑制熔石英元件的受激布里渊散射,基频带宽需大于 30 GHz<sup>[29]</sup>;ICF 研究中为了抑制靶丸附近激光等离子体不稳定性,需采用宽带激光进行打靶<sup>[30]</sup>。设入射基频光束中心波长为 1053 nm,在最佳匹配温度下,理论模拟了不同  $F$  数系统四倍频转换效率随基频光波长的变化,结果如图 5 所示。四倍频效率随波长的变化曲线近似满足高斯分布,随着基频光波长偏离量增加,四倍频效率下降显著,并且随着  $F$  数增加四倍频效率也将显著下降,当  $F \geq 30$  时,四倍频效率随波长变化基本保持稳定。当波长偏离 1053 nm 时,会聚光束的四倍频将同时存在角度失配和波长偏差引入的波长失配,角度失配量和波长失配量同样存在叠加效应,当系统  $F$  数减小时,波长接受带宽增大,当  $F \leq 20$  时,波长接收带宽呈指数型增长,如图 5 中插图所示,这意味着小  $F$  数系统对波长带宽的敏感性降低,角度失配量部分弥补了波长失配量,小  $F$  数系统更有利于宽带激光的四倍频,此时聚焦透镜可采用消色差处理实现宽带激光的会聚<sup>[31]</sup>。

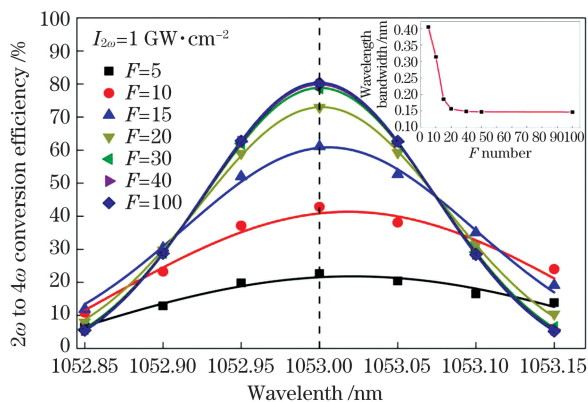


图 5  $T = T_{PM}$  时四倍频转换效率和基频波长的关系

Fig. 5 Dependence of FHG efficiency on wavelength of fundamental laser at  $T = T_{PM}$

### 3.2 会聚光束四倍频效率提升技术

由以上结果可知,与平行光束四倍频相比,该系统在  $F \leq 30$  时四倍频效率下降显著,这是由于离中

心峰值强度距离较远的位置相位失配量较大。若将会聚光束分割成若干子束,针对各子束分别进行会聚光束四倍频,则各子束边缘距离倍频晶体中心的距离将成倍下降,子束的四倍频效率将得到有效提升。针对会聚光束三倍频过程,王军华等<sup>[32]</sup>采用了切割角度不同的 LBO 晶体拼接方式来降低会聚光束相位失配量。对于非临界相位匹配 DKDP 晶体切割角度固定,各子束的 DKDP 晶体需独立调节以降低相位失配量。图 6(a) 为 2 子束分割光束截面,由图 1 可知,DKDP 晶体  $Z$  轴竖直放置,  $2\omega$  光束波矢和晶体  $Z$  轴夹角沿竖直方向连续变化,引起相位匹配角  $\theta$  沿竖直方向变化,为了降低子束匹配角  $\theta$  的变化范围,将光束沿水平方向对称分成 2 子束,对各子束 DKDP 晶体独立调节则可以减低相位失配量。原光束口径为  $a$ ,分割后子束口径为  $a'$ ,各子光束中心指向和四倍频 DKDP 晶体垂直,晶体处于光束口径为  $b'$ ,如图 6(b) 所示。根据会聚光束四倍频理论模型可知,光束分割法将子束的光束口径减小,则子束的  $F$  数得到倍数增加,各子束四倍频性能遵循 3.1 节中描述的规律,由以上结果可知,  $F$  数增加四倍频效率将显著提升。

设  $b' = 130$  mm,子束间距为 40 mm,据此计算了  $F = 5$  时最佳匹配温度下的四倍频光束性能,光束近场分布如图 7 所示。未分割光束距离中心位置大于 50 mm 时四倍频效率下降严重,导致光束的整体四倍频效率仅为 22.6%;分割后子束的边缘低效率部分占比大幅减小,子束的四倍频效率显著提升,达到 47.4%,考虑到光束分割后中心部分遮挡引起的倍频效率下降,分割光束的整体四倍频效率为 47%,相比未分割光束效率提升近一倍。为了进一步提升会聚光束的四倍频效率,可以考虑将光束进行更多子束分割,但是更多子束分割将同时增加工程上光机结构的复杂性;另外,多束分割导致各子束间光束遮挡面积同步增加,且各子光束边缘软化进一步降低了光束总的有效面积。因此,对于小  $F$

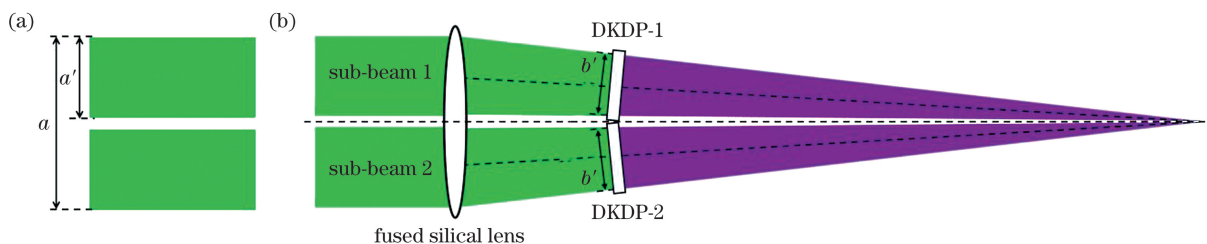


图 6 实验结果。(a) 2 子束分割光束截面;(b) 2 子束分割会聚光束四倍频光路排布

Fig. 6 Experimental results. (a) Cross section of 2 sub-beam segmentation; (b) FHG scheme of 2 convergent sub-beams

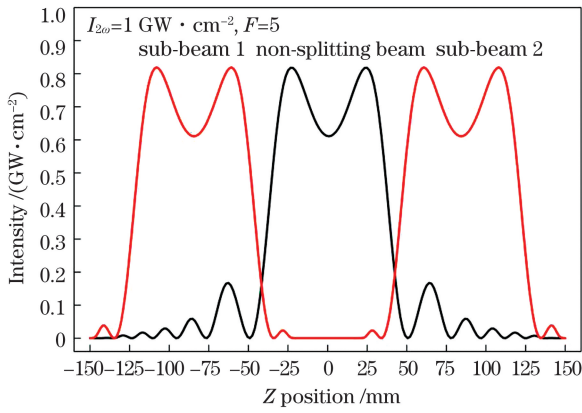


图 7  $F=5, T=T_{PM}$  时未分割光束和分割光束四倍频光束近场对比

Fig. 7 Comparison of  $4\omega$  near-field distribution of non-segmentation beam and segmentation beam at  $F=5$  and  $T=T_{PM}$

数系统, 光束分割法使得四倍频效率仍难以达到 70% 以上, 实际工程应用中光束分割束数需针对具体的应用开展优化。

会聚光束四倍频效率下降的本质是在均一温度和氘含量条件下难以实现晶体上各点的相位匹配。根据(2)式和(7)式可知, 相位失配量是角度、温度和氘含量的函数, 即  $\Delta k = f(\theta, T, x)$ , 对于晶体非中心位置点通过调节此处的温度或氘含量以弥补入射光角度的偏差, 实现相位匹配。若对晶体各点均采用此方法处理则晶体上各点均可实现相位匹配, 此时会聚光束四倍频效率将达到平行光束四倍频的效果, 该方法将导致四倍频晶体上各点的温度或氘含量分布随晶体位置变化, 即晶体上的温度或氘含量为梯度分布, 会聚光束和温度梯度分布结合的方法

可被用于 ADP 晶体五倍频过程以解决温度分布不均匀引起效率下降的问题<sup>[33]</sup>。

当四倍频晶体上各点满足  $x = x_{NCPM}, \Delta k = 0$  时理论计算了不同  $F$  数下各点匹配温度随晶体  $Z$  向位置的变化曲线, 结果如图 8(a) 所示。可以看出, 随着  $|Z|$  的增加匹配温度呈非线性减小, 该关系可采用  $T_{PM}(Z) = m \cdot Z^2 + 30$  函数进行拟合, 参数  $m$  和  $F$  数关系曲线如图 8(a) 中插图所示, 当  $F \leq 20$  时参数  $m$  随着  $F$  数增加迅速增大, 当  $F > 20$  时, 参数  $m$  缓慢趋于 0。晶体温度的梯度分布可通过在晶体周围布控温控系统或采用温度差异化的气流吹扫晶体表面实现, 在线采用热成像仪检测晶体的温度分布以便实时调节<sup>[34]</sup>。另外, 当晶体上各点温度均为  $T_{NCPM}$  时可通过调节晶体上各点的氘含量使得各点满足  $\Delta k = 0$ 。图 8(b) 给出了晶体上各点  $T = T_{NCPM}, \Delta k = 0$  时各点匹配氘含量和晶体位置的关系。与梯度温度匹配类似, 随着  $|Z|$  的增加匹配氘含量呈非线性减小, 该关系可采用  $x_{PM}(Z) = n \cdot Z^2 + 64.5\%$  函数进行拟合, 随着  $F$  数增加参数  $n$  迅速增大并逐渐趋于零。DKDP 晶体采用传统法生长时晶体沿着  $Z$  轴生长, 生长溶液由  $KH_2PO_4, H_2O$  和  $D_2O$  组成, 溶液的氘含量可通过调节  $H_2O$  和  $D_2O$  的比例进行调节, 晶体氘含量  $x_c$  由溶液氘含量  $x_s$  决定, 即  $x_c = 0.68x_s \exp(0.00382x_s)$ <sup>[35]</sup>。DKDP 晶体在生长的过程中按照设定的程序通过不断添加  $H_2O$  或  $D_2O$  来调节溶液的氘含量从而获得氘含量沿  $Z$  轴变化的 DKDP 晶体, 获得的 DKDP 晶体可采用拉曼光谱法测量晶体的氘含量分布<sup>[36]</sup>。

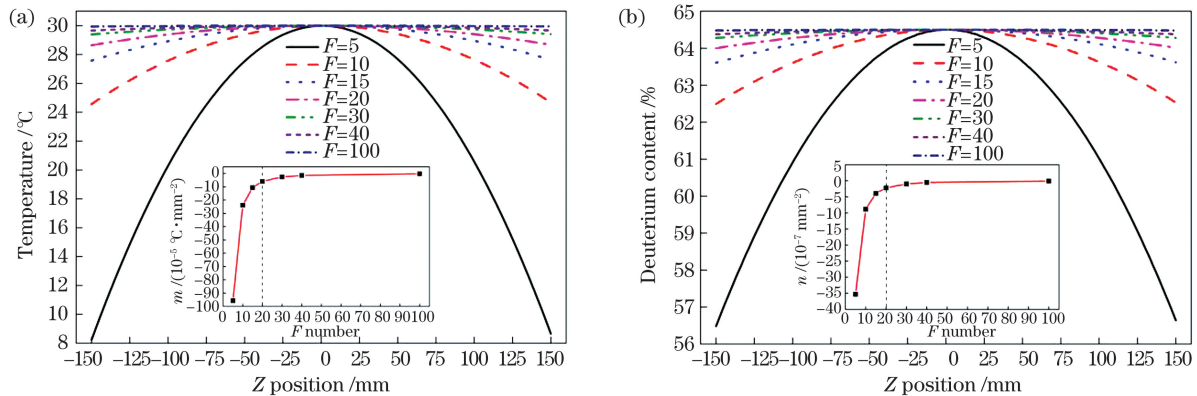


图 8 实验结果。(a)  $D = D_{NCPM}$  时匹配温度随晶体  $Z$  向位置的变化曲线; (b)  $T = T_{NCPM}$  时匹配氘含量随晶体  $Z$  向位置的变化曲线

Fig. 8 Experimental results. (a) Dependence of phase-matching temperature on  $Z$  position at  $D = D_{NCPM}$ ; (b) dependence of phase-matching deuterium content on  $Z$  position at  $T = T_{NCPM}$

在  $F=5$  时,采用各点匹配的温度或氘含量设计理论模拟了四倍频光束近场,结果如图 9 所示。结果显示,四倍频光束近场达到了 10 阶超高斯分布,四倍频光束效率大幅提升,四倍频效率达到 80.2%。理论上,针对各  $F$  数均可设计出匹配的温度分布和氘含量分布以实现会聚光束各点的相位匹配,但实际操作时,对于  $F$  数较大( $F \geq 30$ )或较小系统( $F \leq 5$ )均不易实现。当  $F$  数较大时,晶体温度或氘含量随位置变化梯度较小,这对晶体周围温度场和晶体氘含量控制精度要求较高;当  $F$  数较小时,晶体温度或氘含量随位置变化梯度较大,这将引起晶体内应力增加,一方面使得晶体存在开裂风险,另一个方面内应力将引起晶格结构畸变导致四倍频效率下降<sup>[36]</sup>。

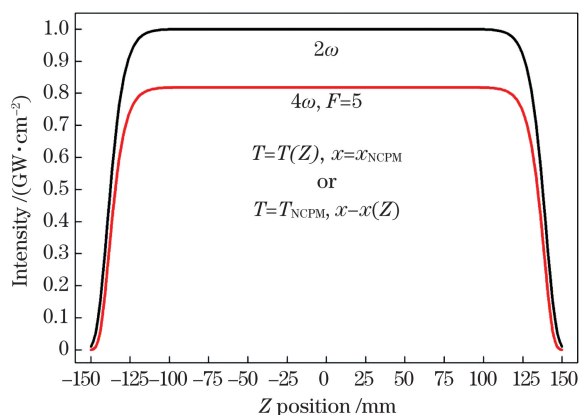


图 9  $F=5$  时,在  $T=T_{PM}(Z)$  或  $x=x_{PM}(Z)$  条件下四倍频光束近场分布

Fig. 9  $4\omega$  near-field distribution at  $F=5$  and  $T=T_{PM}(Z)$  or  $x=x_{PM}(Z)$

由以上结果可知,光束分割法、温度梯度分布法和晶体氘含量梯度分布法均可实现会聚光束四倍频效率的大幅提升,但是各方法在工程实践中均有各自的局限性,例如,光束分割法的子束分割不宜过多,温度及氘含量梯度分布法的变化梯度不宜过大或过小。在工程实践中,为了降低各方法的实现难度可以考虑将这几种方法组合使用,针对特定  $F$  数的倍频系统制定针对性的方案以实现会聚光束高效四倍频。

## 4 结 论

基于非临界相位匹配 DKDP 晶体,本文系统研究了会聚光束  $F$  数对四倍频效率的影响。结果表明,系统  $F \leq 30$  时,四倍频效率随  $F$  数增大而快速增加; $F$  数到达 30 时,四倍频效率增速下降,此时四倍频效率可达 80% 以上;系统  $F \leq 20$  时,四倍频的

温度及波长接收带宽显著增加。针对小  $F$  数系统,本文提出了光束分割的方法来提升四倍频效率,光束分割束数需针对具体的工程应用开展优化,但子束间光束遮挡使得整体四倍频效率仍难以达到 70% 以上。为了进一步提升会聚光束四倍频效率,本文提出了采用温度梯度分布和晶体氘含量梯度分布的方法使得会聚光束在 DKDP 晶体上各点满足相位匹配,会聚光束四倍频效率可达 80% 以上,并给出了温度及晶体氘含量梯度分布随会聚光束  $F$  数的变化规律。实际工程应用中,可将各种方法组合使用以降低单一方法实现的工程难度。该研究有助于解决熔石英透镜前置方案的局限性,为四倍频光束在高功率激光系统中获得更广范围的应用奠定了基础。

## 参 考 文 献

- [1] Spaeth M L, Manes K R, Kalantar D H, et al. Description of the NIF laser[J]. Fusion Science and Technology, 2016, 69(1): 25-145.
- [2] Miquel J L, Prene E, LMJ &. PETAL status and program overview[J]. Nuclear Fusion, 2019, 59(3): 032005.
- [3] Zhang X M, Wei X F. Review of new generation of huge-scale high peak power laser facility in China[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(1): 0100003. 张小民, 魏晓峰. 中国新一代巨型高峰值功率激光装置发展回顾[J]. 中国激光, 2019, 46(1): 0100003.
- [4] Zhu J Q, Chen S H, Zheng Y X, et al. Review on development of Shengguang II laser facility [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(1): 0100002. 朱健强, 陈绍和, 郑玉霞, 等. 神光 II 激光装置研制 [J]. 中国激光, 2019, 46(1): 0100002.
- [5] Labaune C G, Fabre E, Max C E, et al. Effect of laser wavelength and pulse duration on laser-light absorption and back reflection[J]. Physical Review Letters, 1982, 48(15): 1018-1021.
- [6] Han W, Feng B, Zheng K X, et al. Laser-induced damage growth of fused silica at 351 nm on a large-aperture high-power laser facility[J]. Acta Physica Sinica, 2016, 65(24): 246102. 韩伟, 冯斌, 郑奎兴, 等. 高功率激光装置熔石英紫外损伤增长研究[J]. 物理学报, 2016, 65(24): 246102.
- [7] Cao Z, He H B, Hu G H, et al. Time-resolved investigation of multiple-pulse laser-induced bulk damage in fused silica[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(8): 0803001. 曹珍, 贺洪波, 胡国行, 等. 多脉冲激光诱导熔石英

- 体损伤的时间分辨研究[J]. 中国激光, 2019, 46(8): 0803001.
- [8] Peng G, Lu L H, Dong Z, et al. Propagation of laser-induced particles from fused silica[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(4): 0403001.  
彭舸, 卢礼华, 董喆, 等. 激光诱导熔融石英释放微粒的传播研究[J]. 中国激光, 2019, 46(4): 0403001.
- [9] Chambonneau M, Rullier J L, Grua P, et al. Wavelength dependence of the mechanisms governing the formation of nanosecond laser-induced damage in fused silica[J]. Optics Express, 2018, 26(17): 21819-21830.
- [10] Jiang X Q, Ji L L, Liu D, et al. Fourth harmonic conversion of 1053 nm laser based on 65% deuterated DKDP crystals[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(9): 0919002.  
姜秀青, 季来林, 刘栋, 等. 基于 65% 掺氘 DKDP 晶体实现 1053 nm 激光四次谐波转换[J]. 光学学报, 2016, 36(9): 0919002.
- [11] Ji S H, Wang F, Zhu L L, et al. Non-critical phase-matching fourth harmonic generation of a 1053-nm laser in an ADP crystal[J]. Scientific Report, 2013, 3: 1605.
- [12] Gauthier J C, Amiranoff F, Popovics C C, et al. LULI activities in the field of high-power laser-matter interaction[J]. Laser and Particle Beams, 1999, 17(2): 195-208.
- [13] MacKinnon A J, Shiromizu S, Antonini G, et al. Implementation of a high energy  $4\omega$  probe beam on the Omega laser [J]. Review of Scientific Instruments, 2004, 75(10): 3906-3908.
- [14] Bao L H, Zhang J Y, Zhao Y, et al. Diagnosing radiative heated Fe/Al plasma by Thomson scattering [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2015, 27(3): 032019.  
鲍利华, 张继彦, 赵阳, 等. 激光汤姆逊散射技术诊断辐射加热 Fe/Al 等离子体状态[J]. 强激光与粒子束, 2015, 27(3): 032019.
- [15] Chen J, Zheng Y L, An N, et al. Noncollinear third-harmonic generation with large angular acceptance by noncritical phase matching in KDP crystal[J]. Optics Letters, 2015, 40(19): 4484-4487.
- [16] Bredikhin V I, Genkin V N, Kuznetsov S P, et al. Ninety-degree phase matching in  $KD_{2x}H_{2(1-x)}PO_4$  crystals in doubling of the second harmonic of a neodymium-glass laser[J]. Soviet Technical Physics Letters, 1977, 3: 407-409.
- [17] Yang S T, Henesian M A, Weiland T L, et al. Noncritically phase-matched fourth harmonic generation of Nd: glass lasers in partially deuterated KDP crystals [J]. Optics Letters, 2011, 36(10): 1824-1826.
- [18] de Yoreo J J, Burnham A K, Whitman P K, et al. Developing  $KH_2PO_4$  and  $KD_2PO_4$  crystals for the world's most power laser[J]. International Materials Reviews, 2002, 47(3): 113-152.
- [19] Wang F, Li F Q, Han W, et al. Large aperture and non-critical phase-matched fourth harmonic generation of Nd: glass lasers [J]. Matter and Radiation at Extremes, 2019, 4(4): 045401.
- [20] Ghosh G, Bhar G. Temperature dispersion in ADP, KDP, and  $KD^*P$  for nonlinear devices [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1982, 18(2): 143-145.
- [21] Webb M S, Eimerl D, Velsko S P. Wavelength insensitive phase-matched second-harmonic generation in partially deuterated KDP [J]. Journal of the Optical Society of American B, 1992, 9(7): 1118-1127.
- [21] Webb M S, Eimerl D, Velsko S P, et al. Wavelength insensitive phase-matched second-harmonic generation in partially deuterated KDP[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1992, 9(7): 1118-1127.
- [22] Auerbach J M, Milam D, Barker C E, et al. Frequency conversion modeling[R/OL]. UCRL-LR-105821-9604, 1996: 199-206. [https://www.researchgate.net/publication/284687563\\_Frequency\\_conversion\\_modeling](https://www.researchgate.net/publication/284687563_Frequency_conversion_modeling).
- [23] Wegner P J, Auerbach J M, Barker C E, et al. Frequency converter development for the national ignition facility [J]. Proceedings of SPIE, 1999, 3492: 392-405.
- [24] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N, et al. Handbook of nonlinear optical crystals [M]. Berlin: Springer, 1999.
- [25] Chai X X, Wang F, Feng B, et al. Noncritical phase-matched fourth harmonic generation properties of traditional grown large-size DKDP crystal[J]. Optics Communications, 2017, 392: 162-166.
- [26] Zhang L S, Zhang F, Xu M X, et al. Noncritical phase matching fourth harmonic generation properties of  $KD_2PO_4$  crystals[J]. Optics Express, 2015, 23(18): 23401-23413.
- [27] Chai X X, Li F Q, Wang S L, et al. Influence of deuteration degree on the transverse stimulated Raman scattering gain coefficient of DKDP crystal [J]. Acta Physica Sinica, 2015, 64(3): 034213.  
柴向旭, 李富全, 王圣来, 等. 氘含量对 DKDP 晶体横向受激拉曼散射增益系数的影响[J]. 物理学报, 2015, 64(3): 034213.
- [28] Shen B, Xiong H, Zhang X, et al. Porous silica antireflective film at ultraviolet laser wavelength



- (266 nm) [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(22): 2216001.
- 沈斌, 熊怀, 张旭, 等. 紫外激光波长(266 nm)多孔二氧化硅减反膜 [J]. *光学学报*, 2020, 40(22): 2216001.
- [29] Manes K R, Spaeth M L, Adams J J, et al. Damage mechanisms avoided or managed for NIF large optics [J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 146-249.
- [30] Eimerl D, Milam D, Yu J N, et al. Large bandwidth frequency-converted Nd: glass laser at 527 nm with  $\Delta\nu/\nu=2\%$  [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 70(18): 2738-2741.
- [31] Kang J, Cui Z R, Zhu P, et al. Research progress of achromatic technology in ultra-short and ultra-intense laser facility [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(9): 090001.
- 康俊, 崔自若, 朱坪, 等. 超短超强激光装置中消色差技术的研究与进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(9): 090001.
- [32] Wang J H, Cheng W Y, Yang J, et al. Frequency tripling of convergent beam with large diameter employing tiling crystals [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2016, 45(12): 1206010.
- 王军华, 程文雍, 杨菁, 等. 利用晶体拼接实现大口径会聚光束三倍频 [J]. *红外与激光工程*, 2016, 45(12): 1206010.
- [33] Wang F. Study on generation and application of high energy DUV lasers [D]. Beijing: China Academy of Engineering Physics, 2020: 80-85.
- 王芳. 高能深紫外激光的产生及应用技术研究 [D]. 北京: 中国工程物理研究院, 2020: 80-85.
- [34] Sun F Z, Zhang P, Lu L H, et al. The effect of airflow on the temperature distribution and the harmonic conversion efficiency of the ADP crystal with large aperture in the temperature control scheme [J]. *Optics & Laser Technology*, 2016, 77: 126-133.
- [35] Loiacono G M, Balascio J F, Osborne W, et al. Effect of deuteration on the ferroelectric transition temperature and the distribution coefficient of deuterium in  $K(H_{1-x}D_x)_2PO_4$  [J]. *Applied Physics Letters*, 1974, 24(10): 455-456.
- [36] Huser T, Hollars C W, Siekhaus W J, et al. Characterization of proton exchange layer profiles in  $KD_2PO_4$  crystals by micro-Raman spectroscopy [J]. *Applied Spectroscopy*, 2004, 58(3): 349-351.

## Influence of $F$ Number on the Fourth-Harmonic-Generation Efficiency of Convergent Beam and Its Improvement Technologies

Chai Xiangxu, Li Ping, Feng Bin\*, Wang Fang, Zheng Kuixing, Li Fuquan, Zhu Qihua, Wang Liquan, Wang Guanzhong

*Laser Fusion Research Center, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900*

### Abstract

**Objective** In high-power laser facility, the ultraviolet laser damage of fused-silica optics becomes the bottleneck restricting its output capacity and is the key to affect the long-term stable operation of the laser facility. It is found that placing the fused-silica lens in front of the fourth harmonic generation (FHG) crystal can effectively reduce its damage probability. However, this scheme will cause the convergent beam to achieve harmonic conversion in the crystal and the FHG frequency decreases as a result, which limits its engineering application. It is an urgent problem to improve the FHG efficiency of convergent beam. DKDP crystal with non-critical phase matching is the best scheme to realize the high-efficiency FHG of large-aperture convergent beam. Based on the non-critical phase matching DKDP crystal, this paper firstly studies the influence of  $F$  number on the FHG efficiency of convergent beam systematically. Then the beam segmentation, temperature gradient distribution, and deuterium content gradient distribution methods are proposed to improve the FHG efficiency. This study is helpful to solve the limitation of the preposition scheme of fused-silica lens and lay a foundation for the wider application of the FHG beam in high-power laser facility.

**Methods** Based on the phase matching theory and the coupled wave equation, a theoretical model of FHG of large-aperture convergent beam is established. The crystal size of DKDP is set as  $360\text{ mm} \times 360\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ , and the crystal is not coated. The diameter double frequency ( $2\omega$ ) beam is 300 mm and the beam has an 11-order super-Gaussian distribution. In order to facilitate the control of crystal temperature, the non-critical phase matching temperature is set at  $30\text{ }^\circ\text{C}$ , and the deuterium content of DKDP crystal is 64.5%. Based on the above theoretical

model, this paper mainly studies the harmonic conversion process from  $2\omega$  to  $4\omega$ .

**Results and Discussions** It is found that the FHG efficiency of convergent beam decreases obviously when  $F \leq 30$ . The optimum matching temperature of convergent beam increases with the  $F$  number and incident  $2\omega$  intensity generally [Fig. 3(b)]. This paper theoretically simulates the change of the FHG efficiency with  $2\omega$  intensity at the optimum matching temperature for different  $F$  number systems (Fig. 4). The results show that when  $2\omega$  intensity is greater than  $0.75 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$  the FHG efficiency of  $F \leq 10$  system gradually tends to saturation, while the FHG efficiency of  $F = 15-20$  system slowly increases first and then decreases significantly with the increase of  $2\omega$  intensity. The FHG efficiency of  $F \geq 30$  system continuously increases with the increase of  $2\omega$  intensity. Besides, at the same  $2\omega$  intensity the FHG efficiency rapidly increased with the  $F$  number when  $F \leq 30$ . As the  $F$  number reaches 30, the growth rate of FHG efficiency decreases and the FHG efficiency is more than 80%. In addition, when  $F \leq 20$  the temperature and wavelength acceptance bandwidth of the system increase significantly [Fig. 3(a) and Fig. 5]. This is because the angle mismatch, temperature mismatch, and the wavelength mismatch have a superposition effect. The angle mismatch can partially compensate for the temperature mismatch and wavelength mismatch. For the FHG of convergent beams, the efficiency decrease is mainly due to the large phase mismatch at the position far away from the beam center. If the converging beam is divided into several sub-beams and each sub-beam is quadrupled individually, the FHG efficiency of the converging beam can then be effectively improved as a result (Fig. 7). Although sub-beam segmentation method can improve the FHG efficiency, it also increases the shielding area of each sub-beam. Therefore, for small  $F$ -beam systems, the beam segmentation method still makes it difficult to achieve the FHG efficiency of more than 70%. The phase mismatch is a function of angle, temperature, and deuterium content. The phase matching can be realized by adjusting the temperature or deuterium content at the non-central position point of the crystal to compensate for the deviation of incident light angle. It should be noted that this method will lead to each point temperature or deuterium content on crystal changing with crystal position, namely the temperature or deuterium content on the crystal shows a gradient distribution. Therefore, this method can make the convergent beam meet the phase matching at each point on the DKDP crystal and the FHG efficiency can reach more than 80%. The variations of temperature and deuterium content gradient distribution with convergent beam  $F$  number are given in detail (Fig. 8).

**Conclusions** Based on non-critical phase-matched DKDP crystal, the influence of  $F$  number on the FHG efficiency of convergent beam is systematically studied in this paper. The results show that the FHG efficiency rapidly increases with the  $F$  number when  $F \leq 30$ . As the  $F$  number reaches 30, the growth rate of FHG efficiency decreases and the FHG efficiency is more than 80%. In addition, when  $F \leq 20$ , the temperature and wavelength bandwidth of quadruple frequency are significantly increased. Therefore, the convergent beam with a small  $F$  number is more conducive to the FHG frequency of the broadband laser. For the small  $F$ -number system, this paper proposes a beam segmentation method to improve the FHG efficiency of convergent beams. However, the overall FHG efficiency is still difficult to reach more than 70% due to the beam shielding between sub-beams. In order to further improve the FHG efficiency of the convergent beam, the methods of temperature gradient distribution and deuterium content gradient distribution are proposed to make the convergent beam meet the phase matching at each point on the DKDP crystal, so that the FHG efficiency of the convergent beam can reach more than 80%. In theory, matching temperature gradient distribution and deuterium content distribution can be designed for each  $F$  number, but in practice, it is not easy to achieve the gradient distribution for large  $F$  number ( $F \geq 30$ ) or small system ( $F \leq 5$ ). It can be known from the above results, the beam segmentation method, the temperature gradient distribution and crystal deuterium content gradient distribution method can improve the FHG efficiency of convergent beam dramatically, but every method has its own limitations. In engineering practice, in order to reduce the implementation difficulty of every method, these methods can be combined to develop a specific scheme for the FHG of a specific  $F$  number.

**Key words** nonlinear optics; fourth harmonic generation; convergent beam;  $F$  number; phase matching; frequency conversion efficiency

**OCIS codes** 190.2620; 160.4330; 140.3610