

# 1.06 μm 激光的高效率三倍频

尤晨华 陆祖康 范琦康  
(浙江大学光仪系)

## 提 要

本文用数值法求得三波耦合幅度方程的大信号解,并给出了时间高斯型光束倍频和三倍频效率的计算方法,提出了在中小基波功率密度下实现高效率三倍频的方案。用 β-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体 I 型倍频、KD\*P II 型三倍频,在激光器输出能量为 365 mJ 时,获得了 41.8% 的三次谐波能量转换效率。

## 一、引 言

Nd:YAG 激光器输出的 1.06 μm 激光辐射可以高效率地转换成二次、三次及高次谐波,它已成为一个有价值的可见光和紫外光辐射光源,其 355 nm 的三次谐波对于激光喇曼光谱学、光化学、大气研究、高速紫外全息及泵浦短波长染料激光器等等都有广泛的应用。

获得三次谐波的途径有两条:一是利用光与物质相互作用的三阶非线性效应直接得到三次谐波,另一是利用光的二阶非线性效应通过倍频和混频来得到。由于二阶效应通常比三阶效应要大得多,采用二阶效应可获得更高效率。目前,对于中小功率密度(200 MW/cm<sup>2</sup> 以下)的基波光进行三倍频,转换效率都在 <20%<sup>[1,2]</sup>。至于高功率密度(4GW/cm<sup>2</sup> 以上)的三次谐波转换,效率已达 80% 以上<sup>[3]</sup>。本文用数值积分法求解了产生三次谐波的混频过程的耦合幅度方程,讨论了实际系统中影响效率的因素。在低转换效率下,倍频和三倍频的能量转换效率计算都是在小信号近似下进行的<sup>[4]</sup>。然而在高转换效率下,小信号近似不适用了。虽然也有作者计算过大信号下的 KDP 倍频和三倍频<sup>[5]</sup>,但他们只给出计算结果,没有具体讨论计算方法。由于计算中涉及到求雅可比椭圆函数的值,给计算带来了一定的困难。本文提出用数值积分方法来求解,得到了倍频和三倍频的效率曲线,并用 6.94 mm β-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体倍频,30 mm 厚的 KD\*P 晶体三倍频进行了实验,获得了 40% 以上的三倍频效率。理论计算和实验结果是符合的。

## 二、计算方法

在非线性和晶体中,倍频和混频是根据麦克斯韦波动方程所包含的非线性极化来得到的。三波耦合幅度方程组在均匀平面波无损情况下为<sup>[6]</sup>

$$\left. \begin{aligned} d\epsilon_1^*/dz &= (\omega_1^2 n/k_1 \cos^2 \alpha_1) \epsilon_3^* \epsilon_2 e^{i\Delta k z}, \\ d\epsilon_2^*/dz &= (\omega_2^2 n/k_2 \cos^2 \alpha_2) \epsilon_3^* \epsilon_1 e^{i\Delta k z}, \\ d\epsilon_3/dz &= -(\omega_3^2 n/k_3 \cos^2 \alpha_3) \epsilon_1 \epsilon_2 e^{i\Delta k z}, \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中  $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$  分别是频率为  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  的波的振幅,  $k_1, k_2, k_3$  为它们波矢的模,  $\Delta k (= k_3 - k_1 - k_2)$  是波矢失匹配量,  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  分别是各个频率的波的电场强度矢量与电感强度矢量之间的夹角。  $\kappa = \frac{2\pi}{c^3} \chi_{\text{eff}}$ ,  $\chi_{\text{eff}}$  是有效非线性极化率,  $c$  为光速,  $z$  是光在晶体中所走过的路程。

在(1)式中将各方程的实部与虚部分开,再引入代换:

$$\left. \begin{aligned} u_1 &= (c^2 k_1 \cos^2 \alpha_1 / 8\pi \omega_1^2 w)^{1/2} \rho_1, \\ u_2 &= (c^2 k_2 \cos^2 \alpha_2 / 8\pi \omega_2^2 w)^{1/2} \rho_2, \\ u_3 &= (c^2 k_3 \cos^2 \alpha_3 / 8\pi \omega_3^2 w)^{1/2} \rho_3, \\ \zeta &= \kappa \left( \frac{8\pi w}{c^2} \right)^{1/2} \left( \frac{\omega_1^2 \omega_2^2 \omega_3^2}{k_1 k_2 k_3 \cos^2 \alpha_1 \cos^2 \alpha_2 \cos^2 \alpha_3} \right)^{1/2} z, \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

(式中  $\rho_1, \rho_2, \rho_3$  分别是振幅  $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$  的实部,  $w$  是单位面积的功率通量。)可得三波之强度的通解为

$$\left. \begin{aligned} u_3^2(\zeta) &= u_{3a}^2 + (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \text{sn}^2[(u_{3a}^2 - u_{3b}^2)^{1/2}(\zeta + \zeta_0), \gamma], \\ u_2^2(\zeta) &= u_2^2(0) + u_3^2(0) - u_{3a}^2 - (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \text{sn}^2[(u_{3a}^2 - u_{3b}^2)^{1/2}(\zeta + \zeta_0), \gamma], \\ u_1^2(\zeta) &= u_1^2(0) + u_3^2(0) - u_{3a}^2 - (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \text{sn}^2[(u_{3a}^2 - u_{3b}^2)^{1/2}(\zeta + \zeta_0), \gamma], \\ \gamma &= (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) / (u_{3c}^2 - u_{3a}^2), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

其中  $u_{3a}^2, u_{3b}^2, u_{3c}^2$  分别是方程

$$u_3^2(m_3 - u_3^2)(m_1 - u_3^2) - \left( \Gamma - \frac{1}{2} \Delta s u_3^2 \right) = 0 \quad (4)$$

时,  $u_{3c}^2$  的三个根, 且  $u_{3c}^2 \geq u_{3b}^2 \geq u_{3a}^2 \geq 0$ ,  $m_1 = u_2^2 + u_3^2$ ,  $m_3 = u_1^2 + u_3^2$ ,  $\Delta s = \Delta k z / \zeta$ ,  $\Gamma$  由初始条件决定。

由于三波耦合幅度方程组的解是一个雅可比椭圆函数, 这给求解其值带来了困难。我们借助于电子计算机用常微分方程的一个数值积分方法——双边法<sup>[7]</sup>来完成其数值解。双边法的物点在于它每一步的值向两边偏离真解, 其偏差近似相等, 它们公式误差的主要部分不但是同阶的, 而且系数相同, 符号相反, 取平均值后就得到精确度较高的辛卜生公式。它的计算精度比其他几种常用方法(如四阶RK法、四阶阿当姆斯外插法、哈明法等)都要高。

根据椭圆函数:  $t = \text{sn}(u, k)$  的定义, 有

$$dt, du = \sqrt{(1-t^2)(1-k^2 t^2)}, \quad (5)$$

由椭圆函数的周期性和加法公式可得

$$\left. \begin{aligned} \text{sn}(u + \kappa) &= \sqrt{(1 - \text{sn}^2 u)(1 - k^2 \text{sn}^2 u)}, \\ \text{sn}(u + 2\kappa) &= -\text{sn} u, \quad \text{sn}(u + 4\kappa) = \text{sn} u, \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

其中  $\kappa$  是全椭圆积分:

$$\kappa = \int_0^1 \frac{dt}{\sqrt{(1-t^2)(1-k^2 t^2)}} = \int_0^{\pi/2} \frac{d\varphi}{\sqrt{1-k^2 \sin^2 \varphi}} \quad (7)$$

从(7)式出发, 利用雅氏椭圆函数的性质(6)式, 通过双边法数值积分, 就可得到椭圆函数的值, 所得到的函数曲线最大误差不超过 0.5%。

倍频过程是简并的三波相互作用过程, 把(3)式中的  $u_1^2, u_2^2$  分别当作基波两个分量的光子数密度,  $u_3^2$  为二次谐波的光子数密度, 其二次谐波的转换效率为

$$\eta_{\text{SHG}} = I_2/w = \omega_2 u_2^2 \quad (8)$$

在三倍频过程中,  $u_1^2$ 、 $u_2^2$ 、 $u_3^2$  分别是基波二次谐波和三次谐波的光子数密度, 三次谐波的转换效率为

$$\eta_{\text{THG}} = I_3/w = \omega_3 u_3^2 \quad (9)$$

根据上述计算方法, 我们对实验条件下的情况进行了模拟计算, 倍频是用 I 型 6.94 mm 厚的  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  晶体<sup>[8]</sup>, 三倍频用的是 30 mm 厚的 KD\*P 晶体,  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  是一种新型非线性晶体, 其有关倍频的性质, 我们在另一篇文章中作介绍<sup>[9]</sup>。图 1 和图 2 表示对时间上是矩形脉冲的基波的计算结果, 图 1 是倍频效率曲线, 图 2 是相应的三倍频效率曲线,  $\overline{\Delta\theta}$  是发散光束的平均发散角, 这将在第四节中讨论。

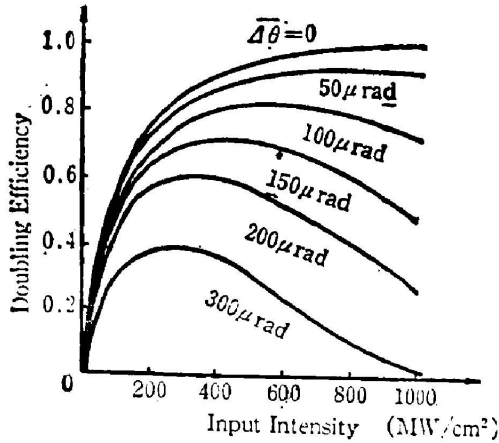


Fig. 1 Doubling characteristics for single rays in a 6.94-mm thick type-I  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  30-mm thick type-II KDP system

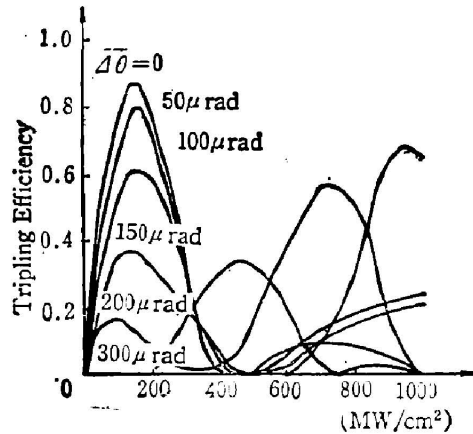


Fig. 2 Tripling characteristics for single rays in a 6.94-mm thick type-I  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$  30-mm thick type-II system

### 三、时间高斯型脉冲的三次谐波能量转换效率

以上计算是对平面波矩形脉冲而言的。但实际上从激光器出来的光束不可能是平面波矩形脉冲的, 理想情况下激光脉冲的时间和空间能量分布都是呈高斯型的。对于时间高斯型的激光脉冲, 强度分布可写成:

$$P_{10}(t) = P_{\text{max}} \exp(-\ln 2 \cdot t^2/t_0^2), \quad (10)$$

其中  $t_0$  是 FWHM 的一半。可以将 (10) 式表达的光束在时间上分割成许多等光强区域, 计算出各个时间区域上的效率, 便可求出总的平均效率, 若时间  $t \rightarrow t + \Delta t$  区域内的效率表示为  $\eta(t)$ , 则总效率:

$$\eta = \frac{2 \sum_{t=0}^{\infty} \eta(t) P_{10}(t) \Delta t}{\sum_{t=0}^{\infty} P_{10}(t) \Delta t} = \frac{2}{w} \sum_{t=0}^{\infty} \eta(t) P_{10}(t) \Delta t, \quad (11)$$

在实际计算中, 当  $t \rightarrow 4t_0$  时, (10) 式中的指数函数小于 0.0001, 足以略去不计。用这个方法, 还能得到任意时空能量分布的非均匀平面波的倍频和三倍频的能量转换效率。

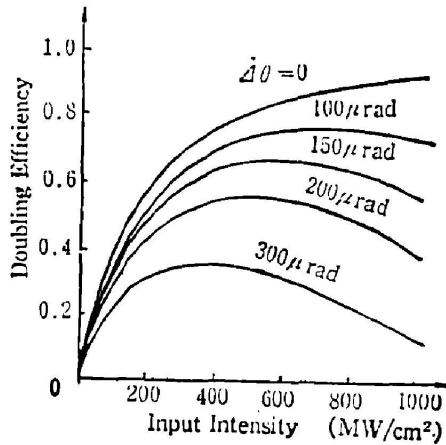


Fig. 3 Doubling characteristics of a 6.94-mm thick type-I  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 30-mm thick type-II KD\*P system, averaged over the Gaussian temporal profile

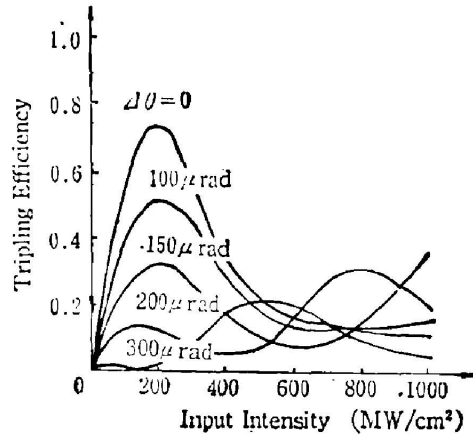


Fig. 4 Tripling characteristics of a 6.94-mm thick type-I  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 30-mm thick type-II KD\*P system, averaged over the Gaussian temporal profile

图 3、图 4 表示与图 1、图 2 相同的三倍频系统下对时间高斯型取平均的倍频和三倍频效率特性。从图中可看出，对时间高斯型脉冲取平均后，倍频和三倍频效率都降低了，这是由于峰值以外的其他功率值的转换效率要低于峰值转换效率的缘故。

#### 四、角度失谐的影响

由于倍频和三倍频晶体调节的准直精度和光束发散角的影响都会造成角度失配，引起

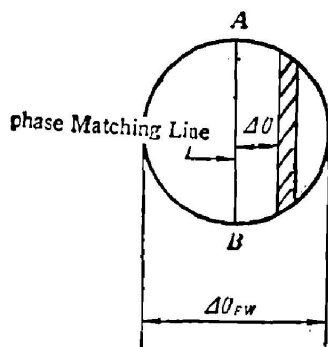


Fig. 5 End view of diverging rays with a cone angle defined by  $\Delta\theta_{FW}$ . All rays whose tips lie within the shaded area depart from phase matching by an angle  $\Delta\theta$

转换效率下降，角度失配在低功率密度下是一个不可忽视的问题。对于 I 型  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 倍频， $\Delta k = 1.13 \Delta\theta/\lambda$ ，对于 II 型 KD\*P 三倍频， $\Delta k = 0.519 \Delta\theta/\lambda$ 。如果定义一个接受角  $\Delta\theta$ ：在  $\pm \Delta\theta$  范围内，光线最大失配为  $\Delta k = \pi/L$ ，则对 6.94 mm  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 倍频晶体和 30 mm 的 KD\*P 三倍频晶体，接受角分别为 0.425 mrad 和 0.214 mrad。显然，对三倍频晶体的准直精度的要求要高得多。同样，相同的光束发散角对三倍频效率的影响要比倍频大得多。我们用一个比较简单的方法来估算光束发散角的影响。

图 5 表示迎着光线传播方向看到的发散光束的末端视图，垂线 AB 方向是方位角  $\varphi$  方向，它对失匹配不灵敏。水平方向为匹配角  $\theta$  方向，它对失匹配很灵敏。假定光线的方向在直径  $\Delta\theta_{FW}$  的锥体内均匀分布，所有通过垂线 AB 的光线都是相位匹配的，对偏角  $\Delta\theta$  的垂直带取平均可以求得平均角偏

差  $\overline{\Delta\theta}$ ：

$$\overline{\Delta\theta} = \frac{2 \int_0^{\Delta\theta_{FW}/2} 2\sqrt{(\Delta\theta_{FW}/2)^2 - (\Delta\theta)^2} \cdot \Delta\theta \, d\Delta\theta}{2 \int_0^{\Delta\theta_{FW}/2} 2\sqrt{(\Delta\theta_{FW}/2)^2 - (\Delta\theta)^2} \, d\Delta\theta}, \quad (12)$$

即

$$\overline{\Delta\theta} = \frac{2}{3\pi} \Delta\theta_{FW} = 0.2 \Delta\theta_{FW}. \quad (13)$$

图 1 至图 4 中的  $\overline{\Delta\theta}$  就是按照这个数学模型计算的。显然,在低功率下光束发散角对三倍频效率的影响比倍频大得多。

### 五、三倍频的实验结果

低功率密度下的三倍频宜采用不失谐的 I 型倍频和 II 型三倍频方案 (如图 6)。这是与高功率密度下的情况不同的。在高功率密度下,通常的 I 型和 II 型倍频效率将很高,可达 80% 以上,但对于三倍频来说,最佳混合比(二次谐波能量/总能量)为 67%,也即希望倍频效率在 67% 左右,这时进入三倍频晶体的基波和二次谐波光子数相等,可获得最高的三次谐波转换效率,所以要人为地造成倍频失配<sup>[8]</sup>。但在低功率密度下,倍频效率达不到 67%,再人为地使倍频失配是没有意义的。通常的 II 型倍频也不适合,因为它将使进入到三倍频晶体的一部分基波光不参加混频作用,造成能量的浪费。

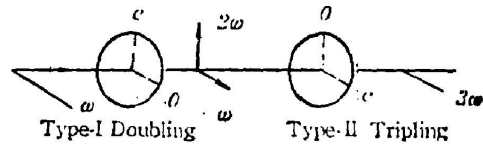


Fig. 6 The scheme for THG

三倍频的实验装置如图 7 所示。主要是一个 Nd:YAG 激光器,倍频器是 6.94 mm 厚的 I 型  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体,三倍频器是厚 30 mm 的 II 型 KD\*P 晶体,  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 是直接暴露在实验室环境中的, KD\*P 晶体被密封在三倍频器内以防潮解,输入窗片镀了 1.06 μm、0.53 μm 的增透膜,输出窗片对 1.06 μm、0.53 μm 和 0.355 μm 都是高透的。倍频和三倍频的总能量转换效率可由下式表示:

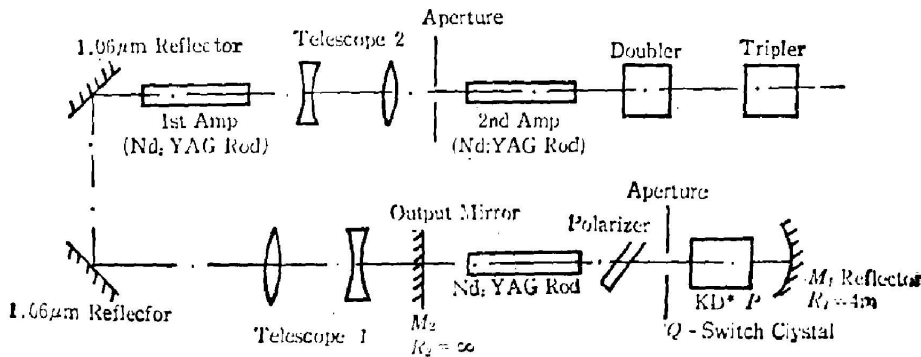


Fig. 7 Setup for THG experiment

$$\eta_{\text{SHG}} = (0.95)^{-2} E_B^{2\omega} / E_A^{2\omega}, \quad (14)$$

$$\eta_{\text{THG}} = (0.96)^{-2} E_C^{3\omega} / (E_B^{2\omega} + E_B^{\omega}), \quad (15)$$

式中各种能量值可对照图 8 得出, 系数表示扣除不镀膜晶体表面的菲涅耳反射损耗。因为

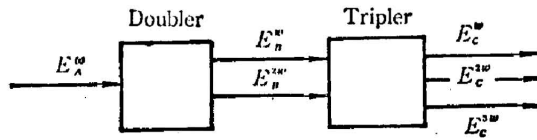


Fig. 8 Scheme for energy measurement

这种菲涅耳损耗可以通过在晶体表面镀增透膜(或折射率)与晶体匹配的窗口来消除, 因此, (14)、(15)式的计算是正确的。

最初的实验装置并没有望远镜, 这时基波光束发散角为 0.652 mrad (内含

70% 的能量), 则平均发散角  $\overline{\Delta\theta} = 0.2 \times 0.652 / 0.7 = 0.186 = 186 \text{ mrad}$ 。当基波能量  $E_A^{\omega}$  为 630 mJ, 基波脉宽为 8 ns (相当于峰功率密度  $147 \text{ MW/cm}^2$ ) 时, 二次谐波能量  $E_B^{2\omega}$  为 320 mJ, 输入到三倍频晶体的总能量  $E_B^{\omega} + E_B^{2\omega}$  为 576 mJ, 此时三次谐波能量为 124 mJ。但按 (14)、(15) 式计算, 倍频效率  $\eta_{\text{SHG}}$  和三倍频效率  $\eta_{\text{THG}}$  分别为 56% 和 26%, 这个结果与理想平面波(图 2)对时间高斯型脉冲取平均(图 4)的结果是基本一致的。

为了进一步提高三倍频效率, 必须改善光束质量, 降低发散度。为此, 我们在两级放大器之间加了扩束望远镜, 这时光束发散角  $\Delta\theta_{\text{FW}}$  为 0.4 mrad (内含 80% 以上能量), 其平均角偏差  $\overline{\Delta\theta}$  约为  $0.2 \times 0.4 / 0.8 = 0.1 \text{ mrad}$ 。实验结果如图 9 和图 10 所示。图 9 是倍频效率曲线, 图 10 是三倍频效率曲线。实线表示单光线情况, 虚线表示对时间高斯型脉冲取平均, “▲”表示实验结果。可以看出, 三倍频效率的实验值和理论值是相符合的。在输入基波能量为 365 mJ 时 (相当于峰值基波功率密度为  $120 \text{ MW/cm}^2$ ), 三次谐波的能量转换效率达 41.8%。

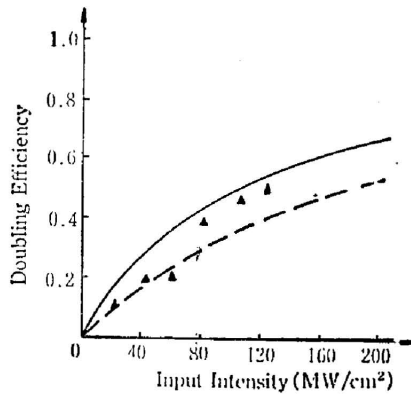


Fig. 9 Experimental results for SHG. Solid line: single rays; dash line: averages over Gaussian temporal profile; “▲”: measured results

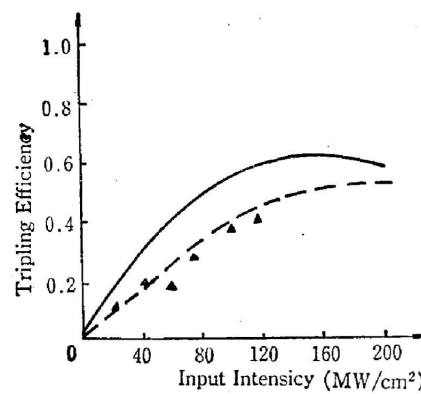


Fig. 10 Experimental results for THG. Solid line: single rays; dash; line: averages over Gaussian temporal profile “▲”: measured results

## 六、结 论

通过以上的理论计算和对实验结果的讨论, 对 Nd:YAG 激光的三倍频可得如下结论: 在中小基波功率密度下, 应采用 I 型倍频和 II 型三倍频方案, 此时三倍频效率对倍频

晶体的角度失谐不很灵敏,但对三倍频晶体的角度失谐非常灵敏,因此对三倍频器要求有较高的准直精度。基波光束质量对三倍频效率影响很大,要提高三倍频效率必须降低光束发散角。

### 参 考 文 献

- [1] M. Okada, *et al.*; *Japn. J. Appl. Phys.*, 1971, **10**, No. 6 (Sep), 808.
- [2] K. Kato; *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **25**, No. 6 (15 Sep) 342.
- [3] W. Sefa, *et al.*; *Opt. Commun.*, 1980, **34**, No. 3 (Mar), 469.
- [4] G. D. Boyd, D. A. Kleinman; *J. Appl. Phys.*, 1968, **39**, No. 7 (Jul), 3597.
- [5] R. S. Craxton; *IEEE J. Q. E.*, 1981, **QE 17**, No. 9 (Sep), 1771.
- [6] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, *et al.*; *Phys. Rev.*, 1962, **127**, No. 6 (Jun), 1918.
- [7] 孙德芳;《应用数学与计算数学》, 1985, **2**, No. 3 (Aug), 205.
- [8] 陈创天等;《中国科学》,B 辑, 1984, No. 7 (Jul), 598.
- [9] 吴曼华等;“ $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 的高效率倍频”待发表。

## High-efficiency frequency tripling of 1.06 $\mu\text{m}$ laser radiation

YOU CHENHUA, LU ZUKANG AND FAN QIKANG

(Department of Optical Instrument, Zhejiang University, Hangzhou)

(Received 17 September 1985)

### Abstract

In this paper, coupled-wave equations are solved for large signals by means of numerical integration. A numerical method for calculating SHG and THG efficiencies of beams with Gaussian temporal profiles is given. A high-efficiency frequency tripling scheme for low and moderate power levels is presented. With type-I  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystal used in doubling and type-II KD\*P used in tripling, energy conversion efficiencies of THG as high as 41.8% have been achieved at an energy level of 365 mJ.