

文章编号: 0253-2239(2005)03-387-5

三阶非线性效应对三次谐波振荡转换的影响^{*}

赵华君^{1,2} 杨李茗² 冯国英¹ 张清泉³ 朱启华³ 陈建国¹

1 四川大学电子信息学院, 成都 610064
2 成都精密光学工程研究中心, 成都 610041
3 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900

摘要: 使用快速傅里叶变换和四阶龙格-库塔法, 对 KDP 晶体内以 I / II 类角度失谐设置方式的高强度激光三次谐波振荡转换进行了研究, 考虑了谐波转换过程中的三阶非线性 $\chi^{(3)}$ 、衍射、离散等效应, 并着重研究了 KDP 晶体的三阶非线性效应对高强度激光三次谐波转换的影响。研究表明, 三阶非线性效应降低了三次谐波振荡转换效率, 增大了相位扰动对 3ω 光束的强度调制, 然而通过增加二倍频的失谐角 $\Delta\theta_s$, 可以避免三阶非线性效应对三次谐波振荡转换带来的不利影响。

关键词: 非线性光学; 三次谐波振荡; 三阶非线性; KDP 晶体; I / II 类角度失谐; 失谐角

中图分类号: O437.1 文献标识码: A

The Effect of Third-Order Nonlinear Interaction on High-Efficiency Third Harmonic Generation Conversion

Zhao Huajun^{1,2} Yang Liming² Feng Guoying¹ Zhang Qingquan³ Zhu Qihua³ Chen Jianguo¹

1 College of Electronic information, Sichuan University, Chengdu 610064
2 Fine Optical Engineering Research Center, Chengdu 610041
3 Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900

Abstract: A theoretical analysis is presented for conversion of third-harmonic generation (THG) in KDP crystal for type I / II angle-detuning scheme of high-intensity laser. Taking into account the the third-order nonlinear effects, transverse walk-off and diffraction, mostly the effects of third-order nonlinear $\chi^{(3)}$ interactions on the frequency conversion and the phase matching condition are discussed. A split-step algorithm based on the fast Fourier transform (FFT) and a Runge-Kutta (R-K) integrator is used. The results show that the third-order nonlinear effect decreases the tripling efficiencies and increases the modulate depth of the output intensity of 3ω radiation. However, adjusting the angular detuning ($\Delta\theta_s$) can avoid effectively the third-order nonlinear effects.

Key words: nonlinear optics; third harmonic generation; third-order nonlinear; KDP crystal; type I / II angle-detuning; angular detuning

1 引 言

1961 年 Franken 等^[1] 使用红宝石激光在石英晶体内首次发现了二次谐波振荡 (SHG) 的存在, 该实验的成功翻开了非线性光学研究崭新的一页。目前, 由于高强度激光三次谐波振荡 (THG) 转换在惯性约束核聚变 (ICF) 中的重要意义, 国内外对此展开了广泛的研究。其中对如何提高谐波转换效率, 改善谐波光束质量, 避免 3ω 光束 ($0.351 \mu\text{m}$) 对晶

体及其膜层造成的损伤已成为人们共同关心的问题^[2~7]。以往的研究对 KDP 晶体的三阶非线性效应 $\chi^{(3)}$ 考虑较少, 然而随着激光强度的不断提高, 三阶非线性效应已成为制约三次谐波振荡转换的一个重要因素之一。

实际应用时, 通常采用 KDP 或 KD^*P 晶体对强激光进行高效二、三次谐波振荡转换, 转换过程中, 晶体表面加工波纹、缺陷、膜层及晶体折射率分布的

* 中国工程物理研究院与国家自然科学基金会联合基金 (10176019) 资助课题。

作者简介: 赵华君 (1974~), 男, 硕士研究生, 主要从事激光与光通信方面的研究。E-mail: fgyzl@sohu.com

收稿日期: 2004-03-30; 收到修改稿日期: 2004-07-12

不均匀等诸因素的存在,不可避免会造成光束波前的相位畸变和振幅调制^[8]。相位畸变和振幅调制在三阶非线性效应的作用下,不但使三次谐波振荡转换效率降低,而且还会引起光束的非线性自聚焦,严重时甚至造成晶体及其膜层的破坏。为了研究 KDP 晶体的三阶非线性效应对三次谐波振荡转换效率的影响,本文采用了包括三阶非线性、离散及衍射等效应的谐波转换计算模型,详细讨论了相位调制情况下三阶非线性效应对谐波转换的影响。结果表明,KDP 晶体的三阶非线性效应降低了三次谐波振荡转换效率,增大了相位扰动对 3ω 光束的强度调制,然而通过调节

倍频时的失谐角 $\Delta\theta_s$ (二倍频时二次谐波振荡传输方向与完全相位匹配方向间的轻微失配夹角称为失谐角),可以避免三阶非线性对三次谐波振荡转换带来的不利影响,这对高强度激光三次谐波振荡转换的研究和工程设计具有重要的参考意义。

2 物理模型及理论分析

本文的物理模型采用 KDP 晶体,以 I / II 类角度失谐的方式进行三次谐波振荡转换^[9]。对于 I 类匹配二倍频,耦合波方程组为^[10,11]

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_1 + 2in_o(\omega) \frac{\omega}{c} \frac{\partial E_1}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{c^2} \bar{\chi} E_1^* E_2 \exp(i\Delta kz) - \\ \epsilon_0 n_o(\omega)^2 \frac{\omega^2}{c} [\gamma_{11} |E_1|^2 + 2\gamma_{12} |E_2|^2] E_1, \end{aligned} \quad (1a)$$

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_2 + 2in_e(\omega) \frac{2\omega}{c} \left[\frac{\partial E_2}{\partial z} + \rho_{2\omega}(\theta) \frac{\partial E_2}{\partial y} \right] = -\frac{(2\omega)^2}{2c^2} \bar{\chi} E_1^2 \exp(i\Delta kz) - \\ \epsilon_0 n_o(2\omega)^2 \frac{(2\omega)^2}{c} [2\gamma_{21} |E_1|^2 + \gamma_{22} |E_2|^2] E_2, \end{aligned} \quad (1b)$$

对于 II 类匹配三倍频,耦合波方程组为

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_1 + 2in_e(\omega) \frac{\omega}{c} \left[\frac{\partial E_1}{\partial z} + \rho_{\omega}(\theta) \frac{\partial E_1}{\partial y} \right] = -\frac{\omega^2}{c^2} \bar{\chi} E_2^* E_3 \exp(i\Delta kz) - \\ \epsilon_0 n_e(\omega)^2 \frac{\omega^2}{c} [\gamma_{11} |E_1|^2 + 2\gamma_{12} |E_2|^2 + 2\gamma_{13} |E_3|^2] E_1, \end{aligned} \quad (2a)$$

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_2 + 2in_o(2\omega) \frac{2\omega}{c} \frac{\partial E_2}{\partial z} = -\frac{(2\omega)^2}{c^2} \bar{\chi} E_1^* E_3 \exp(i\Delta kz) - \\ \epsilon_0 n_o(2\omega)^2 \frac{(2\omega)^2}{c} [2\gamma_{21} |E_1|^2 + \gamma_{22} |E_2|^2 + 2\gamma_{23} |E_3|^2] E_2, \end{aligned} \quad (2b)$$

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_3 + 2in_e(3\omega) \frac{3\omega}{c} \left[\frac{\partial E_3}{\partial z} + \rho_{3\omega}(\theta) \frac{\partial E_3}{\partial y} \right] = -\frac{(3\omega)^2}{c^2} \bar{\chi} E_1 E_2 \exp(-i\Delta kz) - \\ \epsilon_0 n_e(3\omega)^2 \frac{(3\omega)^2}{c} [2\gamma_{31} |E_1|^2 + 2\gamma_{32} |E_2|^2 + \gamma_{33} |E_3|^2] E_3, \end{aligned} \quad (2c)$$

其中: E_1, E_2 和 E_3 分别是 $1\omega, 2\omega, 3\omega$ 的复振幅; $\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ 表示横向衍射, $\bar{\chi} = \chi \sin 2\theta \cos 2\phi$ 是有效非线性系数, Δk 是相位失配量, θ 是光传播方向与 z 光轴的夹角, ϕ 是方位角, c 为真空中的光速,

$$\begin{aligned} \rho_{\omega}(\theta) &= \frac{1}{n_e(\omega, \theta)} \frac{\partial n_e(\omega, \theta)}{\partial \theta}, \\ \rho_{2\omega}(\theta) &= \frac{1}{n_e(2\omega, \theta)} \frac{\partial n_e(2\omega, \theta)}{\partial \theta}, \\ \rho_{3\omega}(\theta) &= \frac{1}{n_e(3\omega, \theta)} \frac{\partial n_e(3\omega, \theta)}{\partial \theta} \end{aligned}$$

是离散因子, $\gamma_{ij} (i, j = 1, 2, 3)$ 是三阶非线性系数, $n_e(\omega, \theta), n_e(2\omega, \theta)$ 和 $n_e(3\omega, \theta)$ 分别是基频、二倍频

和三倍频 e 光的折射率, $n_o(\omega), n_o(2\omega)$ 分别是基频和二倍频 o 光的折射率。

I/II 类角度失谐方式进行的三次谐波振荡转换分两步,首先以 I 类角度失谐方式进行倍频,在倍频过程中需要将两个 1ω 的光子耦合产生一个 2ω 的光子;然后再以 II 类角度失谐方式进行和频,和频过程中是将倍频得到的 2ω 的光子与倍频剩余的 1ω 的光子耦合产生 3ω 的光子。I 类倍频相位匹配条件为 $n_o(\omega) = n_e(2\omega, \theta)$, 相位失配量 Δk 表示为^[12]

$$\Delta k = \frac{2\omega}{c} [n_e(2\omega, \theta) - n_o(\omega)], \quad (3)$$

角度相位匹配就是通过调节 θ 来改变 $n_e(2\omega, \theta)$, 使

二倍频过程满足 $\Delta k = 0$, 从而实现最佳匹配。II 类和频过程中, 为了使三次谐波振荡转换效率最大, 要求 $1\omega, 2\omega$ 混频过程中剩余基频光和二倍频光的光子数之比为 $1:1$ 。一般通过调节倍频的失谐角 $\Delta\theta_s$, 以使倍频转换效率约等于 66.7% 。

以上耦合过程分别由方程组(1)、(2)表示, 当入射基频光强度较弱时, 耦合过程中的三阶非线性效应可以忽略, 这时只需考虑二阶非线性效应, 因此方程组右边只余下第一项, 该方程组就变成通常使用的耦合波方程组^[2]。然而当入射光功率密度较大, 达到 GW/cm^2 量级时, 三阶非线性效应的影响就会比较明显, 此时如果忽略三阶非线性效应, 则三次谐波振荡转换的最佳匹配条件就得不到满足。因此, 在计算倍频失谐角 $\Delta\theta_s$ 时, 应将 KDP 晶体的三阶非线性效应考虑在内。

本文的模型中假设入射光束形式为^[2]

$$E(x, y) = E_0(x, y) \exp(i\phi_p), \quad (4)$$

式中 E_0 为无相位扰动及振幅调制光束的场分布, ϕ_p 是入射基频光的相位调制函数, 表示为

$$\phi_p(x, y, 0) = 2\pi\sigma_p \left[\cos\left(\frac{2\pi x}{l}\right) + \cos\left(\frac{2\pi y}{l}\right) \right], \quad (5)$$

其中 σ_p 为调制深度, l 为调制周期。

3 数值计算及结果分析

使用快速傅里叶变换(FFT)和四阶龙格库-塔法(R-K)^[13]求解耦合波方程组(1)和(2)。设入射光束为 10 阶超高斯光束, 其中 $\lambda_0 = 1.054 \mu\text{m}$, $\omega_0 = 10 \text{ mm}$, $l = 2 \text{ mm}$, I/II 类角度失谐的相位匹配角分别为 $\theta_s = 41.20^\circ$, $\phi_s = 45^\circ$ 和 $\theta_T = 59^\circ$, $\phi_T = 0$; 二倍频、三倍频 KDP 晶体厚度分别为 11 mm 和 9 mm , 三倍频时相位完全匹配(无失谐)。二倍频晶体入射端面处 $E_2 = 0$, 三倍频晶体入射端面处 $E_3 = 0$, 非线性系数 $\chi = 0.78 \text{ pm/V}$, 三阶非线性系数 γ_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$) 采用洛彻斯特大学激光高能实验室(LLE)的实验数据^[14]。

图 1 是失谐角与三次谐波振荡转换效率的关系曲线。计算参量为: 入射基频光峰值光强密度 $I_0 = 5 \text{ GW}/\text{cm}^2$, 初始入射基频光的相位扰动 $\sigma_p = 0.01$ 。图 1 中, 曲线 a 没有考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 从中可以看出, 当不考虑三阶非线性效应时三次谐波振荡的转换效率在失谐角约为 $250 \mu\text{rad}$ 时有最大值约 92% , 此时, 如果考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 三次谐波振荡转换效率将下降到约 75% 。

曲线 b 是考虑三阶非线性效应时失谐角与三次谐波振荡转换关系, 从曲线 b 可以看出, 在考虑了 KDP 晶体的三阶非线性效应后, 三次谐波振荡转换效率在失谐角约为 $280 \mu\text{rad}$ 时达到最大值约 91% , 此时所需失谐角比没考虑三阶非线性情况增加了约 $30 \mu\text{rad}$ 。可见, 因为三阶非线性效应的影响, 倍频过程偏离使三倍频转换效率达到最大的最佳相位匹配条件, 从而导致三倍频转换效率下降。因此, 考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应后要使三次谐波振荡转换效率最大就必须相应的增大失谐角, 即通过增加二倍频的失谐角调节二次谐波振荡的转换效率, 以满足和频过程中的最佳匹配条件。

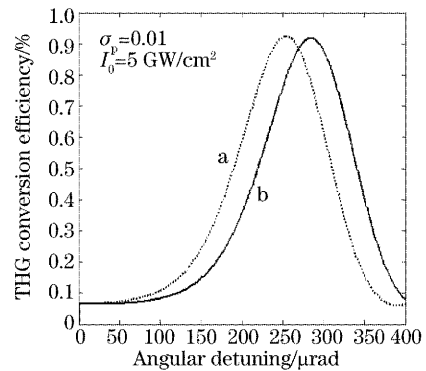


图 1 失谐角与三次谐波振荡转换效率的关系(曲线 a: 没考虑三阶非线性, 曲线 b: 考虑三阶非线性)

Fig. 1 THG conversion efficiencies as a function of angular detuning for considering or not the effects of the $\chi^{(3)}$ (a: without $\chi^{(3)}$, b: with $\chi^{(3)}$)

图 2 为初始入射基频光功率密度分布与三次谐波振荡转换效率的关系, 图 2 中曲线 a、b 考虑了

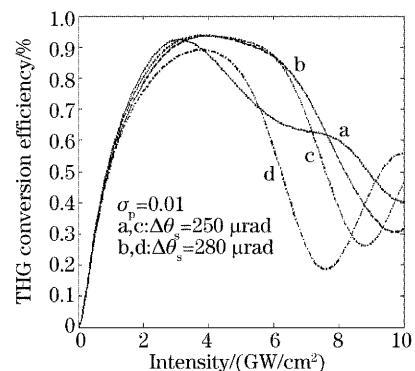


图 2 入射基频光功率密度分布与三次谐波振荡转换效率的关系(曲线 a, b: 考虑了三阶非线性, 曲线 c, d: 没考虑三阶非线性)

Fig. 2 THG conversion efficiencies as a function of incident intensity for considering or not the effects of the $\chi^{(3)}$ (a, b: with $\chi^{(3)}$, c, d: without $\chi^{(3)}$)

KDP 晶体的三阶非线性效应, 曲线 c、d 没有考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, a、c 曲线 $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, b、d 曲线 $\Delta\theta_s = 280 \mu\text{rad}$ 。从图 2 中可以看出在 $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$ 且不考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应时, 入射基频光功率密度可以在 $I_0 = 2.8 \sim 5.7 \text{ GW/cm}^2$ 的较宽范围内保持较高的三次谐波振荡转换效率(大于 90%), 如图 2 中曲线 c 所示; 相同条件下, 如果考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 那么三次谐波振荡转换效率只能在入射基频光功率密度 $I_0 = 2.6 \sim 3.7 \text{ GW/cm}^2$ 的较窄范围内大于 90%, 如曲线 a 所示。当失谐角 $\Delta\theta_s = 280 \mu\text{rad}$, 并考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 那么计算得出三次谐波振荡转换效率可以在入射基频光功率密度 $I_0 = 2.9 \sim 5.4 \text{ GW/cm}^2$ 的较宽范围内大于 90%, 如曲线 b 所示; 相应地, 如果不考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 那么三次谐波振荡转换效率将会明显地下降, 其最大值降到仅为 89%, 如曲线 d 所示。从以上分析可以看出, KDP 晶体的三阶非线性效应明显降低了三次谐波振荡转换效率, 然而通过调节失谐角, 可以获得高的三次谐波振荡转换效

率, 且可使三次谐波振荡转换效率在较宽的入射基频光功率密度范围内保持较高的水平, 从而提高了三次谐波振荡转换的动态范围。

图 3 为不同条件下三次谐波振荡转换时的谐波转换关系, 其中 $I_0 = 5 \text{ GW/cm}^2$, $\sigma_p = 0.005$ 。图 3(a) 中 $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, 且不考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 这时三次谐波振荡转换效率约为 96%, 相位畸变使 3ω 光束的光强具有 7% 的调制; 如果考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 那么三次谐波振荡的转换效率降到仅约为 78%, 3ω 光束的光强调制也增加到 26%, 如图 3(b) 所示。当考虑 KDP 晶体的三阶非线性效应, 同时将失谐角增大到 $280 \mu\text{rad}$, 这时三次谐波振荡转换效率约为 95%, 3ω 光束的光强调制降低到 6%, 如图 3(c) 所示。从图 3 的分析可以看出, 假设入射基频光存在初始相位扰动, 那么 KDP 晶体的三阶非线性效应不但降低了三次谐波振荡转换效率, 还增大了谐波转换中 3ω 光束的光强调制。然而, 通过调节失谐角不但可以获得高的三次谐波振荡转换效率, 而且还可以减小相位扰动对 3ω 光束光强的调制。

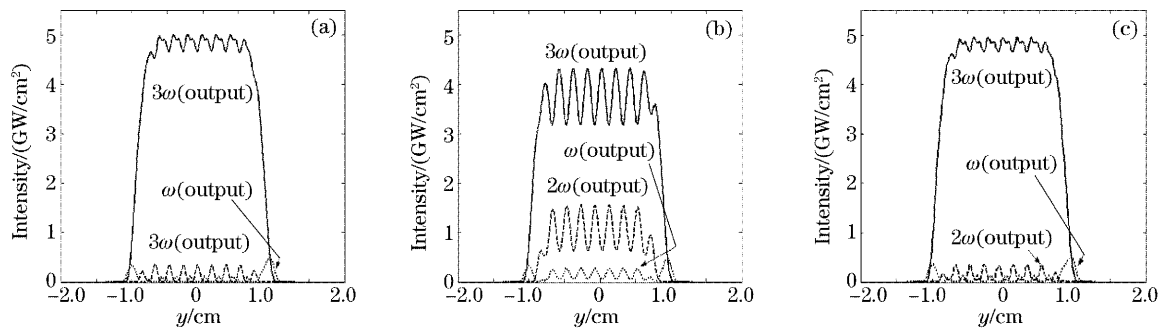


图 3 不同条件下三次谐波振荡转换时的谐波转换关系 (a) $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, 没考虑三阶非线性, (b) $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, 考虑了三阶非线性, (c) $\Delta\theta_s = 280 \mu\text{rad}$, 考虑了三阶非线性 ($I_0 = 5 \text{ GW/cm}^2$, $\sigma_p = 0.005$)

Fig. 3 Output intensity distribution for different assumptive conditions. (a) $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, without $\chi^{(3)}$, (b) $\Delta\theta_s = 250 \mu\text{rad}$, with $\chi^{(3)}$, (c) $\Delta\theta_s = 280 \mu\text{rad}$, with $\chi^{(3)}$ ($I_0 = 5 \text{ GW/cm}^2$, $\sigma_p = 0.005$)

4 结 论

本文针对 I / II 类角度失谐设置方式下的三次谐波振荡转换过程, 在充分考虑了 KDP 晶体三阶非线性、离散和衍射等效效应后, 重点研究了三阶非线性效应对高效三次谐波振荡转换的影响。结果表明, KDP 晶体的三阶非线性效应不但降低了三次谐波振荡转换效率, 而且还增大了相位扰动对 3ω 光束的强度调制, 然而通过增加二倍频的失谐角, 可以避免三阶非线性效应对三次谐波振荡转换带来的不利影响。

参 考 文 献

- 1 Frank P A, Hill A E, Peters C W *et al.*. Generation of optical harmonics[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1961, 7(4): 118~123
- 2 He Yujuan, Cai Bangwei, Wei Xiaofeng *et al.*. Effect of phase ripples on the third harmonic generation[J]. *Chin. J. Lasers*, 2001, **A28**(9): 789~792 (in Chinese)
何钰娟, 蔡邦维, 魏晓峰等. 位相扰动对三次谐波转换的影响[J]. *中国激光*, 2001, **A28**(9): 789~792
- 3 Hou Jing, Ling Ning. Third harmonic conversion of aberrated laser beam[J]. *Chin. J. Lasers*, 2002, **A29**(6): 526~530 (in Chinese)
侯静, 凌宁. 位相畸变三次谐波转换[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(6): 526~530

- 4 Wang T, Zhan T Y, Zhu H Y *et al.*. Analysis of beam-quality degradation in nonlinear frequency conversion[J]. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 2002, **19**(5): 1101~1106
- 5 Qian Liejia, Zhu Baoqiang, Zhang Zhuhong *et al.*. Harmonic generation of phase aberrated laser[J]. *Acta Optica Sinica*, 1995, **15**(4): 417~420 (in Chinese)
钱列加,朱宝强,张筑虹等. 位相畸变激光束的谐波转换[J]. 光学学报, 1995, **15**(4): 417~410
- 6 Qian Liejia, Deng Ximing. Approximate model on transform of beam characteristics in frequency tripling[J]. *Acta Optica Sinica*, 1996, **16**(9): 1223~1226 (in Chinese)
钱列加,邓锡铭. 三倍频激光束特性传输变换的近似模型[J]. 光学学报, 1996, **16**(9): 1223~1226
- 7 Runkel M J, Alank, Burnham. Differences in bulk damage probability distributions between tripper and 2-cuts of KDP and DKDP at 355 nm[C]. *Proc. SPIE*, 2001, **4347**: 408~419
- 8 Zhu B Q, Zhan T Y, Gu Z *et al.*. Third harmonic generation of high-energy large-aperture one micro laser and its spatial beam property investigation[C]. *Proc. SPIE*, 2001, **4268**: 36~42
- 9 Eimerl D, Auerbach J M, Milonni P W. Paraxial wave theory of second and third harmonic generation in uniaxial crystals: I. Narrow band pump fields[J]. *J. Mod. Opt.*, 1995, **42**(5): 1037~1067
- 10 Yoonchan J, Byoung L. Characteristics of second-harmonic generation include third-order nonlinear[J]. *IEEE J. Quant. Electron.*, 2001, **QE-37**(10): 1292~1299
- 11 Wegner P J, Auerbach J M, Barker C E *et al.*. Frequency converter development for the national ignition facility[C]. *Proc. SPIE*, 1999, **3492**: 392~403
- 12 Hou J, Zhang Y D, Jiang W H *et al.*. Second-harmonic generation of beams with aberrations[J]. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 2002, **19**(6): 1380~1390
- 13 Milonni P W, Auerbach J M, Eimerl D. Frequency conversion modeling with spatially and temporally varying beams[C]. *Proc. SPIE*, 1997, **2633**: 230~241
- 14 Self-and cross-phase-modulation coefficients in KDP crystals measured by a Z-scan technique[J]. *LLE Review*, 1998, **74**: 125~130