

基频倍频光群速度对超短脉冲三倍频的影响分析

杨义胜^{1,2} 韩 伟¹ 郑万国¹ 李富全¹ 王 芳¹ 李恪宇¹ 贾怀庭¹

冯 斌¹ 曹丁象¹ 董 军¹ 谭吉春²

(¹ 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900; ² 国防科学技术大学理学院, 湖南 长沙 410073)

摘要 在超短脉冲的谐波转换过程中, 由于不同波包之间的群速度失配的存在, 非线性晶体的有效厚度、转换效率及带宽等将相互制约, 不能获得理想结果。基于耦合波方程, 在平面波和小信号近似条件下推导出了关于基频、倍频光群速度关系的解析表达式。通过对 200 fs 超短脉冲在 II 类 KDP 晶体中的混频过程的模拟分析, 发现在满足相位匹配的前提下, 三次谐波转换效率随着基频、倍频光群速度倒数的差值的平方呈现出指数衰减的关系, 与理论结果吻合。得出的关于基频光、倍频光群速度的表达式, 作为三倍频群速度匹配关系式的必要补充, 对寻找合适的色散晶体和选择有效的匹配措施, 实现宽带三次谐波转换具有理论指导意义。

关键词 非线性光学; 三倍频; 群速度; 超短脉冲

中图分类号 O437.1 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS200828s2.0362

Analysis of Group-Velocities of Fundamental and Second-Harmonic Pulses in Third-Harmonic Generation of Ultrashort Pulse

Yang Yisheng^{1,2} Han Wei¹ Zheng Wanguo¹ Li Fuquan¹ Wang Fang¹ Li Keyu²
Jia Huaiting¹ Feng Bin¹ Cao Dingxiang¹ Dong Jun¹ Tan Jichun²

(¹ Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China)
(² College of Science, National University of Defense Technology, Changsha, Hunan 410073, China)

Abstract In the frequency conversion process of ultrashort pulses, due to group-velocity mismatch (GVM), conversion efficiency, crystal length and pulse bandwidth will affect each other and result in low efficiency or small bandwidth. Based on the nonlinear coupling equations, the analytical expressions about group-velocities of fundamental (FH) and second-harmonic (SH) pulses are derived under the plane-wave and pump un-depletion approximations. THG mixing process with ultrashort pulses (FWHM \approx 200 fs) input is numerically simulated in type-II KDP crystals. The results show that conversion efficiency of 3ω exponentially decrease along with the square of difference between reciprocal of group-velocities of FH and SH pulses, which agree with our theoretical results. Conclusions of this paper are the necessary supplement to the group-velocity-matching relationship of THG, which will be useful for finding proper nonlinear crystals and choosing effective GVM methods in the THG process of ultrashort pulses.

Key words nonlinear optics; third-harmonic generation; group-velocity; ultrashort pulses

1 引 言

采用三次谐波等非线性谐波转换技术将红外超短脉冲拓展到可见光及紫外波段是非常有意义的, 并在近几年获得了较大发展^[1~10]。

在超短脉冲的三次谐波转换过程(本文专指二阶非线性过程: $1\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$)中, 首先需要解决的困难是相位匹配和群速匹配的问题, 这直接决定着三次谐波转换的效率和带宽的有效获得。

基金项目: 国家自然科学基金(60708007)、高温高密度等离子体国防重点实验室基金(9140C6803010802)和中国工程物理研究院科学技术发展基金(2008B0401043)资助课题。

作者简介: 杨义胜(1982—), 男, 博士研究生, 主要从事非线性光学方面的研究。E-mail: ysyang@nudt.edu.cn

导师简介: 谭吉春(1944—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事激光技术、信息光学和图像处理等方面的研究。

E-mail: tan4573290@163.com

传统的“群速匹配”思想是让三波包(分别以 $1\omega, 2\omega$ 和 3ω 为中心波长)以相同的群速度(即 $v_{g1} = v_{g2} = v_{g3}$)在晶体中传播。但由于受非线性晶体固有色散特性的影响,这一理想的“群速匹配”思想几乎无法实现。而如果把三波包以毫无特定关系的三个群速度在晶体中传播,谐波转换的效率和带宽又将显著下降^[11,12]。

在 v_{g1}, v_{g2} 值既定的前提下,当 v_{g3} 值与 v_{g1}, v_{g2} 之间满足关系式: $\frac{1+x}{v_{g3}} = \frac{1}{v_{g1}} + \frac{x}{v_{g2}}$ (其中 $x \doteq T_1^2/T_2^2$, 为基频光与倍频光脉宽比的平方)时,三倍频的转换效率和带宽可达极大值^[13]。然而,该关系式的前提是 v_{g1}, v_{g2} 值既定,并未对 v_{g1}, v_{g2} 值的不同对三次谐波转换的影响做出分析和预测。

本文将在上述群速匹配关系式的基础上,研究基频光、倍频光群速度的不同对三次谐波转换的影响,并通过对 200 fs 超短脉冲在 KDP 晶体中的 II 类三倍频混频过程进行数值分析,验证相关结论。

2 理论推导

2.1 耦合波方程求解

在入射平面波近似下,假设三次谐波过程中三波 $E_1(z, t), E_2(z, t)$ 和 $E_3(z, t)$ 可有以下式表示

$$E_n(z, t) = \frac{1}{2} A_n(z, t) \exp[i(k_n z - \omega_n t)] + c. c., \quad (1)$$

不考虑衍射、空间走离以及三阶非线性效应等,宽带三次谐波转换的瞬态耦合波方程组为:

$$\frac{\partial A_1(z, t)}{\partial z} + \beta_{11} \frac{\partial A_1(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{12} \frac{\partial^2 A_1(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_1 A_1(z, t) = \frac{i\omega_1 d_e}{n_1 c} A_3 A_2^* \exp(i\Delta k_0 z), \quad (2a)$$

$$\frac{\partial A_2(z, t)}{\partial z} + \beta_{21} \frac{\partial A_2(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{22} \frac{\partial^2 A_2(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_2 A_2(z, t) = \frac{i\omega_2 d_e}{n_2 c} A_3 A_1^* \exp(i\Delta k_0 z), \quad (2b)$$

$$\frac{\partial A_3(z, t)}{\partial z} + \beta_{31} \frac{\partial A_3(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{32} \frac{\partial^2 A_3(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_3 A_3(z, t) = \frac{i\omega_3 d_e}{n_3 c} A_1 A_2 \exp(-i\Delta k_0 z), \quad (2c)$$

式中 $\beta_{n1} = (\partial k_n / \partial \omega)_{\omega_n} \equiv v_{gn}^{-1}$ 为一阶群速度效应,等于群速度的倒数, $\beta_{n2} = (\partial^2 k_n / \partial \omega^2)_{\omega_n} \equiv \partial / \partial \omega (1/v_{gn})$ 为二阶群速度色散(GVD), α_n 为吸收系数, d_e 为有效非线性系数; $\Delta k_0 = k_{\omega_3} - k_{\omega_1} - k_{\omega_2}$ 为初始相位失配量, c 为真空中光速。

为了能够解析求解该耦合波方程,本文在小信号近似条件下(即 $|A_{3\omega}| \ll |A_{1\omega}|, |A_{2\omega}|$),此时耦合波方程组可简化为

$$\frac{\partial A_1(z, t)}{\partial z} + \beta_{11} \frac{\partial A_1(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{12} \frac{\partial^2 A_1(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_1 A_1(z, t) = 0, \quad (3a)$$

$$\frac{\partial A_2(z, t)}{\partial z} + \beta_{21} \frac{\partial A_2(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{22} \frac{\partial^2 A_2(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_2 A_2(z, t) = 0, \quad (3b)$$

$$\frac{\partial A_3(z, t)}{\partial z} + \beta_{31} \frac{\partial A_3(z, t)}{\partial t} + \frac{i}{2} \beta_{32} \frac{\partial^2 A_3(z, t)}{\partial t^2} + \alpha_3 A_3(z, t) = \frac{i\omega_3 d_e}{n_3 c} A_1 A_2 \exp(-i\Delta k_0 z), \quad (3c)$$

针对(3a)式、(3b)式分别引入运动坐标系 $(z, T = t - z\beta_{11})$ 、 $(z, T' = t - z\beta_{21})$,容易得到基频、倍频光时域表达式分别为

$$A_1(z, T) = \sqrt{I_1} \exp(-\alpha_1 z) \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} U_1(0, T) \exp(i\omega T) dT \right] \exp\left(\frac{i}{2} \beta_{12} \omega^2 z - i\omega T\right) d\omega, \quad (4a)$$

$$A_2(z, T') = \sqrt{I_2} \exp(-\alpha_2 z) \cdot \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} U_2(0, T') \exp(i\omega T') dT' \right] \exp\left(\frac{i}{2} \beta_{22} \omega^2 z - i\omega T'\right) d\omega, \quad (4b)$$

其中 $U_1(0, T), U_2(0, T')$ 为入射时基频、倍频光归一化振幅。同样,针对(3c)式引入运动坐标系 $(z, \tau = t - z\beta_{31})$,并将(4)式代入,可得到出射三次谐波脉冲频域表达式为

$$\begin{aligned} \tilde{A}_3(z, \omega) &= \frac{i\omega_3 d_e}{n_3 c} \cdot \exp\left[\left(\frac{i}{2} \beta_{32} \omega^2 - \alpha_3\right) z\right] \times \\ &\int_{0-\infty}^{\infty} \int_{0-\infty}^{\infty} [A_1(\xi, \tau) A_2(\xi, \tau)] \exp(i\omega \tau) d\tau \cdot \exp\left[\left(-i\Delta k_0 + \alpha_3 - \frac{i}{2} \beta_{32} \omega^2\right) \xi\right] d\xi, \end{aligned} \quad (5)$$

2.2 高斯脉冲入射下群速度关系

假设基频光、倍频光归一化入射高斯脉冲形式如下

$$U_1(0, t) = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{T_1^2}\right), \quad U_2(0, t) = \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{T_2^2}\right), \quad (6)$$

其中 $T_{1,2}$ 为 $1/e$ 强度处的半宽度。将(6)式代入(4)式和(5)式,容易得到出射三次谐波脉冲的频域表达式

$$\begin{aligned} \tilde{A}_3(z, \omega) = & \sqrt{I_1 I_2} \frac{i\omega_3 d_e}{n_3 c} \cdot \frac{T_1 T_2}{H_1 H_2} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{a(1+x)}} \cdot \exp\left[-\frac{\omega^2}{4a(1+x)}\right] \cdot \exp\left(\frac{i}{2}\beta_{32}\omega^2 z\right) \times \\ & \int_0^z \exp\left[-a \frac{1}{1+1/x}(v_1 - v_2)^2 \xi^2\right] \cdot \exp[-i\Delta k(\omega)\xi] d\xi, \end{aligned} \quad (7)$$

其中 $H_1^2 = T_1^2 - i\beta_{12}z$, $H_2^2 = T_2^2 - i\beta_{22}z$, $v_1 = \beta_{31} - \beta_{11}$, $v_2 = \beta_{31} - \beta_{21}$, 而 $x = \frac{b}{a} = \frac{H_1^2}{H_2^2}$, $a = \frac{1}{2H_1^2}$, $b = \frac{1}{2H_2^2}$ 。

(7)式积分项中的最后一项相位失配量 $\Delta k(\omega)$ 为转换过程中的总相位失配量,等于

$$\Delta k(\omega) = \Delta k_0 + \frac{1}{1+x}(v_1 + xv_2)\omega + \frac{1}{2}\beta_{32}\omega^2, \quad (8)$$

(7)式的积分分为两种情况:

1) 当 $v_1 = v_2$, 即基频光、倍频光群速度相等 $v_{g1} = v_{g2}$ 时,容易积分得到

$$\begin{aligned} \tilde{A}_3(z, \omega) = & \sqrt{I_1 I_2} \frac{i\omega_3 d_e}{n_3 c} \cdot \frac{T_1 T_2}{H_1 H_2} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{a(1+x)}} \cdot \exp\left[-\frac{\omega^2}{4a(1+x)}\right] \cdot \exp\left(\frac{i}{2}\beta_{32}\omega^2 z\right) \times \\ & \frac{i}{\Delta k(\omega)} \{ \exp[-i\Delta k(\omega)z] - 1 \}, \end{aligned} \quad (9)$$

谐波转换效率将呈现 sinc 函数形式。

2) 当 $v_1 \neq v_2$ 时,令 $m = a \frac{1}{1+1/x}(v_1 - v_2)^2$, 有

$$\int_0^z \exp[-m\xi^2] \cdot \exp[-i\Delta k(\omega)\xi] d\xi = \frac{1}{4} \sqrt{\frac{\pi}{m}} \cdot \exp\left[(\sigma - 1) \frac{\Delta k^2(\omega)}{4m}\right] \cdot \{1 - \exp[-\sigma(mz^2 + i\Delta k(\omega)z)]\}, \quad (10)$$

其中 $2 > \sigma > 1$ 。对于小信号近似条件下, z 通常较小,

$$1 - \exp[-\sigma(mz^2 + i\Delta k(\omega)z)] \cong 1 - \exp[-i\sigma\Delta k(\omega)z].$$

将(10)式代入(7)式,可以看出:在基频光、倍频光群速度不等的条件下,随着 v_{g1} , v_{g2} 差值的增大, m 将增大,此时由(10)式可以看出,出射三次谐波脉冲振幅 $\tilde{A}_3(z, \omega)$ 呈指数衰减,而谐波转换效率将呈现出指数衰减的趋势。

3 数值模拟验证

为了验证谐波转换效率随基频倍频光群速度变化的趋势,基于分步傅里叶算法和 Runge-Kutta 积分方法,数值模拟了超短脉冲在 KDP 晶体中的 II 类三倍频混频过程。

3.1 输入参数

入射基频光、倍频脉冲分别采用如下形式高斯

脉冲:

$$A_1(t) = I_1 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{T_1^2}\right), \quad (11a)$$

$$A_2(t) = I_2 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{t^2}{T_2^2}\right), \quad (11b)$$

式中基频倍频脉冲峰值入射功率分别为 $I_1 = 1 \text{ GW/cm}^2$, $I_2 = 2 \text{ GW/cm}^2$, 基频、倍频脉冲宽度 $T_1 = 200 \text{ fs}$, $T_2 = 141 \text{ fs}$, 基频光中心波长 $1.053 \mu\text{m}$ 。固定基频脉冲在晶体中传播群速度为 $v_{g1} = 2.018 \times 10^8 \text{ m/s}$, 改变倍频光脉冲的群速度 v_{g2} 。三次谐波脉冲群速度值分为两种情况,一为取 $\lambda_{3\omega} = 0.351 \mu\text{m}$ 处固定值 $v_{g3} = 1.922 \times 10^8 \text{ m/s}$, 另一为根据群速度匹配关系 $\frac{1+x}{v_{g3}} = \frac{1}{v_{g1}} + \frac{x}{v_{g2}}$ 动态取值,以保证实现群速度之间的匹配。

模拟中晶体切割角度为 II 类混频相位匹配角 $\theta = 59.02^\circ$, 保证初始相位失配 $\Delta k_0 = 0$ 。不考虑二阶群速度色散项 β_{32} 的影响。

3.2 转换效率随基频倍频光群速度变化关系

3.2.1 群速度 v_{g3} 固定取值

群速度 v_{g3} 固定取值指的是出射三次谐波脉冲在 II 类混频晶体 KDP 中的传播群速度取 $v_{g3} = 1.922 \times 10^8$ m/s, 三个群速度中只改变 v_{g2} 。图 1 给出了三次谐波转换效率随基频倍频光群速度差值 $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ 的变化关系曲线。

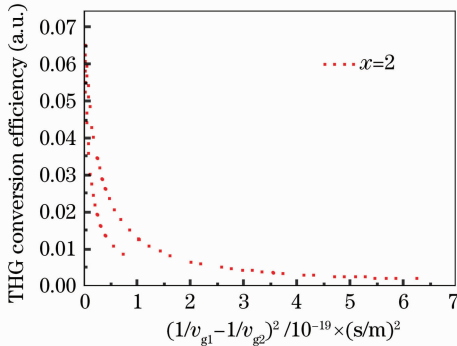


图 1 群速度 v_{g3} 固定取值下三倍频效率与基频倍频光群速度的变化关系

Fig.1 THG conversion efficiency versus $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ for fixed v_{g3} case

转换效率(Y轴)随着基频倍频光群速度倒数差的平方呈现出指数递减的趋势,与理论结果非常吻合。图 1 中出现两条曲线,这是因为倍频光群速度 v_{g2} 大于或者小于基频光群速度 v_{g1} 时,虽然倒数差的平方 $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ 一样,但根据(8)式或者群速度匹配关系式 $(1+x)/v_{g3} = 1/v_{g1} + x/v_{g2}$,将导致不一样的总相位失配量 $\Delta k(\omega)$,从而表现在效率上出现不同的下降幅度。

3.2.2 群速度 v_{g3} 动态取值

群速度 v_{g3} 动态取值指的是出射三次谐波脉冲在 II 类混频晶体 KDP 中的传播群速度动态随着倍频光群速度 v_{g2} 而变,以保证满足群速度匹配关系式 $(1+x)/v_{g3} = 1/v_{g1} + x/v_{g2}$ 。此时,三次谐波转换效率随基频倍频光群速度差值 $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ 的变化关系曲线如图 2 所示。

从图 2 同样可以明显地看到,三次谐波转换效率(Y轴)随着基频倍频光群速度倒数差的平方呈现出指数递减的趋势。与图 1 不同的是,图 2 中只出现一条曲线,倍频光群速度 v_{g2} 大于或者小于基频光群速度 v_{g1} 时,只要倒数差的平方 $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ 一样,所得的谐波转换效率便相同。这主要是由于群速度 v_{g3} 的取值动态地随着倍频光群速度 v_{g2} 而变,保证满足群速度匹配关系式 $(1+x)/v_{g3} = 1/v_{g1} + x/v_{g2}$,使得总相位失配量 $\Delta k(\omega)$ 始终保证为零,从而

表现在效率上出现相同的下降幅度。

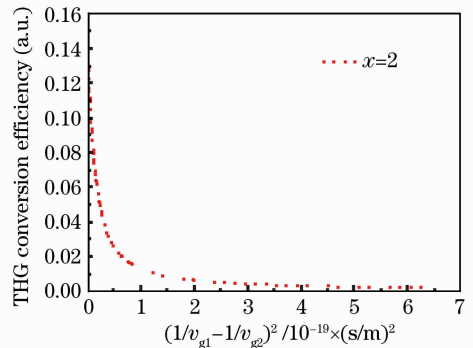


图 2 群速度 v_{g3} 动态取值下三倍频效率与基频倍频光群速度的变化关系

Fig.2 THG conversion efficiency versus $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2$ for dynamic v_{g3} case

另外,从图 1 和图 2 的对比中还可以发现,当 $(1/v_{g1} - 1/v_{g2})^2 = 0$ 时,所得到的转换效率图 2 要明显高于图 1,这也是由于总相位失配量 $\Delta k(\omega)$ 的原因。在图 1 中,群速度 v_{g3} 固定取值,不满足 $(1+x)/v_{g3} = 1/v_{g1} + x/v_{g2}$,从而使得总相位失配量 $\Delta k(\omega)$ 不为零,最终效率下降。这也间接证明了群速度匹配关系式的正确性,而关于基频光、倍频光群速度的表达式,可作为三倍频群速度匹配关系式的必要补充,为进一步提高超短脉冲三倍频的转换效率提供理论指导。

4 结 论

从理论上详细分析了基频光、倍频光群速度在超短脉冲三次谐波转换过程中的影响,得出了出射谐波脉冲关于基频光、倍频光群速度的解析表达式。理论结果表明三次谐波转换效率随着基频、倍频光群速度倒数的差值的平方呈现出指数衰减的关系,两者绝对差值越大,转换效率越低。通过对 200 fs 超短脉冲在 II 类 KDP 晶体中的混频过程的模拟分析,模拟结果与理论结果非常吻合。本文得出的关于基频光、倍频光群速度的表达式,作为三倍频群速度匹配关系式的必要补充,对寻找合适的色散晶体和选择有效的匹配措施,为进一步提高超短脉冲三倍频的转换效率及带宽提供了理论基础和指导意义。

参 考 文 献

- 1 A. Babushkin, R. S. Craxton, S. Oskoui *et al.*. Demonstration of the dual-Tripler scheme for increased-bandwidth third-harmonic generation[J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(12): 927~929
- 2 D. Eimerl, J. M. Auerbach, C. E. Barker *et al.*. Multicrystal designs for efficient third-harmonic generation[J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(16): 1208~1210
- 3 P. J. Wegner, J. M. Auerbach. Frequency converter

- development for National Ignition Facility [C]. *SPIE*, 1999, **3492**: 392
- 4 K. Osvay, I. N. Ross. Broadband sum-frequency generation by chirp-assisted group-velocity matching[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(7): 1431~1438
- 5 Li Keyu, Jia Huaiting, Wang Chengcheng *et al.*. Output-ability analysis of high-intensity third harmonic generation system for ICF driver[J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(7): 903~909
李恪宇, 贾怀庭, 王成程等. 惯性约束核聚变驱动器高强度三倍频系统输出能力分析[J]. 中国激光, 2006, **33**(7): 903~909
- 6 Han Wei, Zheng Wanguo, Yang Yisheng *et al.*. Second harmonic generation at retracing point of phase matching with pre-chirp compensation[J]. *Acta. Optica Sinica*, 2007, **27**(1): 133~137
韩伟, 郑万国, 杨义胜等. 啁啾补偿的折返点匹配二倍频[J]. 光学学报, 2007, **27**(1): 133~137
- 7 D. M. Pennington, M. A. Henesian, S. N. Dixit *et al.*. Effect of bandwidth on beam smoothing and frequency conversion at the third harmonic of the Nova laser[C]. *SPIE*, 1993, **1870**: 175
- 8 Paul R. Bolton, Cecile Limborg-Deprey. Incident IR bandwidth effects on efficiency and shaping for third harmonic generation of quasi-rectangular UV longitudinal profiles[P]. LCLS-TN-05-29, 2005
- 9 Li Kun, Zhang Bin, Li Keyu *et al.*. Third harmonic generation of super intense femtosecond laser pulse[J]. *Chinese J. Lasers*, 2006, **33**(11): 1506~1511
李琨, 张彬, 李恪宇等. 超高强度飞秒脉冲的三次谐波转换[J]. 中国激光, 2006, **33**(11): 1506~1511
- 10 Lü Yanfei, Zhang Xihe, Yao Zhihai *et al.*. Laser-diode pumped all-solid-state continuous-wave ultraviolet laser at 355 nm[J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(8): 1048~1050
吕彦飞, 张喜和, 姚治海等. 激光二极管抽运全固 355 nm 连续波紫外激光器[J]. 中国激光, 2007, **34**(8): 1048~1050
- 11 Liu Yunquan, Zhang Jie, Liang Wenxi *et al.*. Theoretical and experimental studies on third harmonic generation of femto second Ti:sapphire laser[J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, **54**(4): 1593~1598
刘运全, 张杰, 梁文锡等. 飞秒掺钛蓝宝石激光三倍频理论和实验研究[J]. 物理学报, 2005, **54**(4): 1593~1598
- 12 Yang Yisheng, Zheng Wanguo, Han Wei *et al.*. Group-velocity-matching relation in the mixing process of broadband third-harmonic generation[J]. *Acta Physica Sinica*, 2007, **56**(11): 6468~6472
杨义胜, 郑万国, 韩伟等. 宽带三倍频混频过程的群速匹配关系[J]. 物理学报, 2007, **56**(11): 6468~6472
- 13 Yisheng Yang, Wei Han, Wanguo Zheng *et al.*. Group-velocity-matching relationship in the process of third-harmonic generation [J]. *Phys. Rev. A*, 2008, **78**(5): 053801