

# 基于 65% 掺氘 DKDP 晶体实现 1053 nm 激光四次谐波转换

姜秀青<sup>1,2</sup> 季来林<sup>3\*</sup> 刘 栋<sup>3</sup> 唐顺兴<sup>1</sup> 郭亚晶<sup>1</sup> 朱宝强<sup>1</sup> 林尊琪<sup>1</sup>

<sup>1</sup>中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理联合实验室, 上海 201800

<sup>2</sup>中国科学院大学, 北京 100049

<sup>3</sup>中国工程物理研究院上海激光等离子体研究所, 上海 201800

**摘要** 利用质量分数为 65% 的掺氘 DKDP 晶体实现了 1053 nm 激光在非临界相位匹配(NCPM)条件下的四次谐波转换, 实验测得 NCPM 条件下晶体温度为 29.4 °C、晶体接收角宽约为 55 mrad。理论分析了 NCPM 过程中 DKDP 晶体掺氘量和温度对四次谐波转换的影响, 数值模拟了四次谐波转换过程中晶体掺氘量和温度的关系以及四倍频转换效率随倍频光强的变化, 这些结果为四倍频光在高功率激光系统中的应用提供了理论依据。

**关键词** 非线性光学; 四次谐波转换; 非临界相位匹配; DKDP 晶体; 接收角宽

**中图分类号** O437 **文献标识码** A

**doi:** 10.3788/AOS201636.0919002

## Fourth Harmonic Conversion of 1053 nm Laser Based on 65% Deuterated DKDP Crystals

Jiang Xiuqing<sup>1,2</sup> Ji Lailin<sup>3</sup> Liu Dong<sup>3</sup> Tang Shunxing<sup>1</sup>  
Guo Yajing<sup>1</sup> Zhu Baoqiang<sup>1</sup> Lin Zunqi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Joint Laboratory for High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

<sup>2</sup> University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

<sup>3</sup> Shanghai Institute of Laser Plasma, China Academy of Engineering Physics, Shanghai 201800, China

**Abstract** Based on the mass fraction of 65% deuterated DKDP crystals, the fourth harmonic conversion of 1053 nm laser is realized under the condition of noncritical phase matching (NCPM). The experimentally measured crystal temperature is 29.4 °C and the acceptance angle width of the crystals under the NCPM condition is around 55 mrad. Effects of the deuterated amount and the temperature of the DKDP crystals in the process of NCPM on the fourth harmonic conversion are theoretically analyzed. The relationship between the deuterated amount and temperature and the changing of the fourth harmonic conversion efficiency versus the double frequency light intensity are numerically simulated. These results provide a theoretical basis for the application of fourth harmonic laser in the high power laser system.

**Key words** nonlinear optics; fourth harmonic conversion; noncritical phase matching; DKDP crystal; angular acceptance

**OCIS codes** 190.2620; 160.4670

**收稿日期:** 2016-04-13; **收到修改稿日期:** 2016-05-06

**作者简介:** 姜秀青(1991—), 女, 博士研究生, 主要从事四次谐波转换方面的研究。E-mail: jiangxiuqing1991@163.com

**导师简介:** 林尊琪(1942—), 男, 博士, 研究员, 博士生导师, 主要从事高功率激光驱动器方面的研究。

E-mail: zqlin@mail.shenc.ac.cn

\* **通信联系人.** E-mail: jsycjll@siom.ac.cn

# 1 引 言

经过三十多年的发展,以钕玻璃为增益材料的高功率固体激光驱动器已非常成熟,特别是美国国家点火装置(NIF)代表了当前高功率激光驱动器的最高水平<sup>[1]</sup>。但 NIF 的初期实验表明,高功率激光与等离子体相互作用中的不稳定性<sup>[2-3]</sup>,特别是受激散射引起的能量损失,及散射对压缩平衡的破坏是聚变点火的重大障碍。基于对激光等离子体相互作用过程的认知,可以利用更短的波长去压缩等离子体,进一步提高等离子体中受激散射的阈值和能量利用率,以此缓解激光与等离子体相互作用过程中的不稳定性<sup>[4-5]</sup>。另外,可利用短波长激光 Thomson 散射原理对等离子体的时间和空间状态参数进行精密测量<sup>[6-8]</sup>。目前,高功率激光驱动器多数为基于钕玻璃的固体激光器,输出基频光(角频率为  $\omega$ )的波长为 1053 nm,可利用非线性晶体实现不同波长的输出,其四次谐波(角频率为  $4\omega$ ,波长为 263 nm)相对于目前广泛使用的三次谐波(角频率为  $3\omega$ ,波长为 351 nm)和二次谐波(角频率为  $2\omega$ ,波长为 527 nm)具有更短的波长,但是受限于较低的四次谐波转换(FHG)效率和光学元件损伤阈值<sup>[9]</sup>,四次谐波未在激光惯性约束聚变研究中得到广泛应用。随着掺钕磷酸二氢钾(DKDP)晶体生长技术的发展,掺钕 DKDP 晶体可实现室温条件下 1053 nm 激光的非临界相位匹配四次谐波转换<sup>[10-11]</sup>,这使得四倍频激光的应用再次引起人们关注。深入研究钕玻璃激光高效四次谐波转换方法对激光惯性约束聚变的影响具有重要意义。

本文利用质量分数为 65% 的掺钕 DKDP 晶体实现了 1053 nm 激光非临界相位匹配四次谐波转换,理论分析了非临界相位匹配过程中 DKDP 晶体掺钕量(质量分数,下同)和温度对四次谐波转换效率的影响,模拟了非临界相位匹配下 DKDP 晶体四倍频转换效率随倍频光强的变化。研究结果为四倍频激光在高功率激光系统中的应用提供了理论依据。

## 2 四次谐波产生的理论分析

### 2.1 谐波转换的基本方程

高功率钕玻璃激光系统四次谐波转换过程如图 1 所示,其中  $k$  为激光传播的波矢大小, $\omega$  为激光传播的角频率。首先将钕玻璃激光(波长为 1053 nm)通过一块 I 类相位匹配磷酸二氢钾(KDP)晶体实现倍频(波长为 526.5 nm)输出,再通过一块级联的 I 类相位匹配晶体实现 526.5 nm 激光倍频,最终输出四倍频激光(波长为 263.3 nm)。

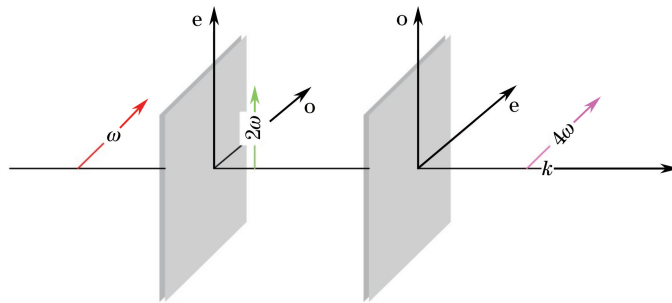


图 1 Nd:glass 激光四倍频过程示意图

Fig. 1 Schematic diagram of fourth harmonic generation for an Nd:glass laser

一般谐波转换过程可利用耦合波方程描述<sup>[12]</sup>。激光光场用  $E_j \exp(i\omega_j t - ik_j z)$  表示,其中  $E_j$  为光场复振幅, $z$  为光波在晶体的中的传播距离,为简化方程,用  $E'_j = \sqrt{n_j} E_j$  代替实际电场复振幅( $j=1,2,4$ ,分别代表基频光、二倍频光和四倍频光);  $n_j$  为不同频率光波的折射率;谐波强度正比于  $|E'_j|^2$ ,对于 1053 nm 激光,倍频过程满足:

$$\begin{cases} \frac{d}{dz} E'_1 = -iK_D E'_2 E'_1{}^* \exp[-i(\Delta k)_D z] - \frac{1}{2} \alpha_1 E'_1 \\ \frac{d}{dz} E'_2 = -iK_D E'_1 E'_1 \exp[i(\Delta k)_D z] - \frac{1}{2} \alpha_2 E'_2 \end{cases}, \quad (1)$$

式中  $K_D$  为倍频过程的非线性耦合系数, $E'_1{}^*$  为  $E'_1$  的复共轭函数, $(\Delta k)_D$  为倍频转换过程中的相位失配量,

$\alpha_j (j=1,2)$  为非线性吸收系数。

$K_D$  可以用下式表达

$$K_D = \frac{\omega}{2c} [n_{o1} n_{o1} n_{e2}(\theta_D)]^{-1/2} \left( \frac{d_{36}}{\epsilon_0} \right)_D \sin \theta_D \sin 2\varphi, \quad (2)$$

式中  $n_{oj}$  和  $n_{ej}$  分别为倍频晶体中寻常光(o光)和非寻常光(e光)的折射率;  $c$  为光在真空中的传播速度;  $\left( \frac{d_{36}}{\epsilon_0} \right)_D$  为倍频晶体的非线性常数;  $\theta_D$  为倍频过程中的相位匹配角, 高功率激光系统中常用的 I 类 KDP 晶体的相位匹配角为  $41.7^\circ$ ;  $\varphi$  为光波的方位角, 通常情况下  $\varphi = \pi/4$ , 以保证非线性系数为最大值。

$(\Delta k)_D$  可以表示为

$$(\Delta k)_D = k_{e2}(\theta) - (k_{o1} + k_{o1}) = \frac{2\omega}{c} [n_{e2}(\theta) - n_{o1}]. \quad (3)$$

非临界相位匹配四倍频激光过程的耦合波方程可以表示为

$$\begin{cases} \frac{d}{dz} E'_2 = -iK_Q E'_4 E'^*_{2'} \exp[-i(\Delta k)_Q z] - \frac{1}{2} \alpha_2 E'_2 \\ \frac{d}{dz} E'_4 = -iK_Q E'_2 E'_2 \exp[i(\Delta k)_Q z] - \frac{1}{2} \alpha_4 E'_4 \end{cases}, \quad (4)$$

其中

$$K_Q = \frac{\omega}{2c} [n_{o2} n_{o2} n_{e4}(\theta_Q)]^{-1/2} \left( \frac{d_{36}}{\epsilon_0} \right)_Q \sin \theta_Q \sin 2\varphi, \quad (5)$$

$$(\Delta k)_Q = k_{e4}(\theta) - (k_{o2} + k_{o2}) = \frac{4\omega}{c} [n_{e4}(\theta) - n_{o2}], \quad (6)$$

式中  $K_Q$  为四倍频过程中的非线性耦合系数,  $E'^*_{2'}$  为  $E'_2$  的复共轭函数, 相位匹配角  $\theta_Q = 90^\circ$ ,  $\left( \frac{d_{36}}{\epsilon_0} \right)_Q$  为四倍频晶体的非线性常数,  $(\Delta k)_Q$  为四次谐波转换过程中的相位失配量。

## 2.2 部分掺氘 DKDP 非临界相位匹配四次谐波条件分析

晶体的折射率与晶体本身的掺氘量和温度有关, 部分掺氘 DKDP 晶体的折射率和掺氘量的关系<sup>[13]</sup>如下

$$n^2(x) = xn_D^2 + (1-x)n_H^2, \quad (7)$$

式中  $n_H$  为 KDP 晶体的折射率,  $n_D$  为质量分数是 100% 的掺氘 DKDP 晶体的折射率,  $x$  为掺氘晶体中氘的质量浓度。对于部分掺氘的 DKDP 晶体, 可以通过改变其温度达到非临界相位匹配, 同样可以通过控制掺氘量来控制非临界相位匹配温度。理论分析了晶体的非临界相位匹配温度  $T_{NCPM}$  和掺氘量的关系, 如图 2 所示, 结果表明, 在室温条件下利用部分掺氘 DKDP 晶体实现了非临界相位匹配 527 nm 激光的四倍频(激光波长由 527 nm 转换至 263 nm)。

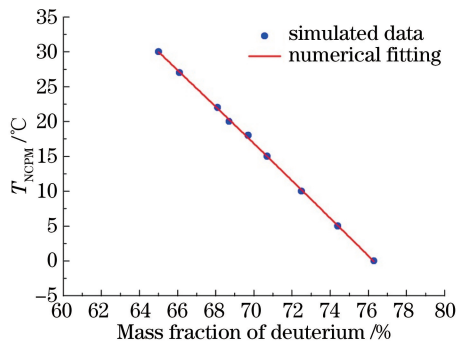


图 2  $T_{NCPM}$  随晶体掺氘量的变化

Fig. 2  $T_{NCPM}$  as a function of mass fraction of deuterium of DKDP crystals

由图 2 可知, 晶体的非临界相位匹配温度随着掺氘量的增加而降低, DKDP 晶体的掺氘量由 65% 增加到 76% 时, 晶体的非临界相位匹配温度由  $30^\circ\text{C}$  降低到  $0^\circ\text{C}$ , 可以推测掺氘量约为 68% 的 DKDP 晶体可以

实现室温条件下的非临界相位匹配。

### 3 非临界相位匹配的实验验证

#### 3.1 实 验

实验中的倍频晶体采用的是长度为 10 mm 的 b-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) 晶体, 口径大小为 10 mm×10 mm, BBO 晶体按照 I 类倍频方式切割, 抽运基频光波长为 1053 nm 时其相位匹配角  $\theta_D = 23^\circ$ 。四倍频晶体采用的是 65% 掺铀 DKDP 晶体, 长度为 10 mm, 口径大小为 40 mm×50 mm, 65% 掺铀 DKDP 晶体也是按照 I 类倍频方式切割, 切割角为 45°。实验设备排布如图 3 所示, 抽运采用单纵、横模 Nd:YLF 振荡器输出 1053.1 nm 激光并经过两级钽玻璃放大, 光束为口径约 8 mm、能量约 800 mJ、脉宽 10 ns 的近高斯脉冲激光。光束近场分布图和时间波形图分别如图 4、5 所示。为了得到纯净的倍频激光, 两块倍频色分离膜放置在 BBO 晶体后。65% 掺铀 DKDP 晶体放置在一个精密的温度控制器内, 温控器的调控精度为  $\pm 0.1^\circ\text{C}$ , 在该晶体后同样放置两块四倍频色分离膜。这样可以直接测量四倍频能量并获得激光波长由 527 nm 转换至 263 nm 的四倍频转换效率。

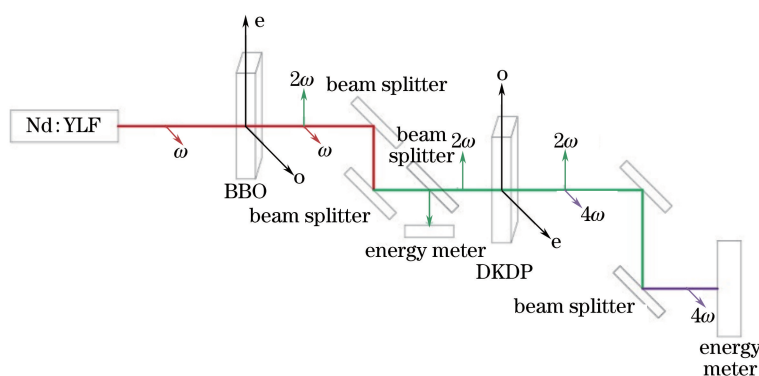


图 3 四倍频输出实验排布

Fig. 3 Experimental arrangement for fourth harmonic generation

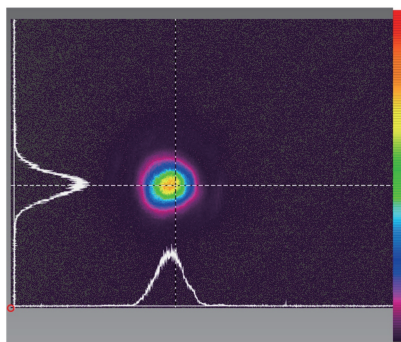


图 4 1053 nm 抽运激光的近场分布

Fig. 4 Near field distribution of 1053 nm pump laser

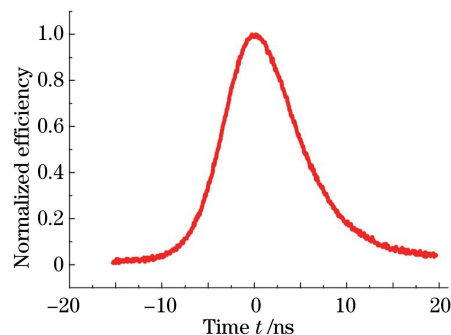


图 5 1053 nm 抽运光的时间波形

Fig. 5 Temporal waveform of 1053 nm pump laser

#### 3.2 实验结果与分析

通过不断调节 65% 掺铀 DKDP 晶体的温度, 获得四倍频转换效率随温度的变化曲线如图 6 所示。当晶体温度为  $(29.4 \pm 0.1)^\circ\text{C}$  时, 实验测得的主峰半峰全宽为  $2^\circ\text{C}$ 。四倍频的转换效率对温度非常敏感, 实验推算相位失配量对温度的敏感度  $\partial(\Delta k)/\partial T$  约为  $2.1/(\text{C} \cdot \text{cm})$ 。当四倍频晶体处在非临界匹配温度, 四倍频激光输出能量约为 45 mJ 时, 倍频抽运光能量为 180 mJ、脉宽为 7.07 ns, 倍频光转换为四倍频光的效率约为 25%。同时, 模拟了长度为 10 mm 的 65% 掺铀 DKDP 晶体在低功率倍频光抽运下四倍频的转换效率, 如图 7 所示, 实验数据与理论模拟结果基本吻合。若将非临界相位匹配的四次谐波转换应用到高功率激光器中, 倍频激光的光强可达到  $2 \sim 2.5 \text{ GW}/\text{cm}^2$ , 考虑到双光子吸收等效效应, 长度为 4, 5, 6 mm 的 DKDP 晶体的四倍频转换效率随倍频光强的变化如图 8 所示, 当倍频抽运光强达到  $2 \text{ GW}/\text{cm}^2$  时, 四倍频的转换效率理论

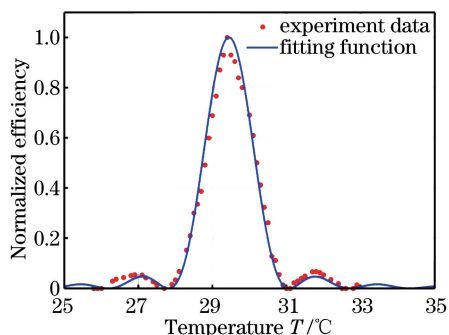


图 6 在 NCPM 条件下,四倍频转换效率随温度的变化

Fig. 6 Conversion efficiency of fourth harmonic generation as a function of temperature under NCPM condition

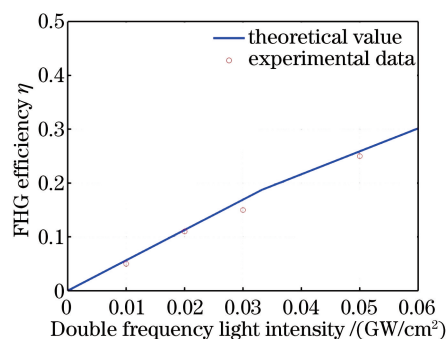


图 7 在 NCPM 条件下,DKDP 晶体四倍频转换效率随倍频光强的变化

Fig. 7 Conversion efficiency of fourth harmonic generation as a function of double frequency light intensity for DKDP crystal under NCPM condition

上可达到 80%。

65% 掺氘 DKDP 晶体在温度为  $(29.4 \pm 0.1)^\circ\text{C}$  条件下实现四倍频最大输出后,改变光束入射晶体的角度,测试转换效率随入射角度的变化,实验测得的转换效率变化曲线如图 9 所示。由图可知,晶体接收角半峰全宽约为 55 mrad,相比于临界相位匹配<sup>[11]</sup>,晶体对角度的敏感性大大降低,这使得其在工程上更容易获得高的四倍频转换效率。

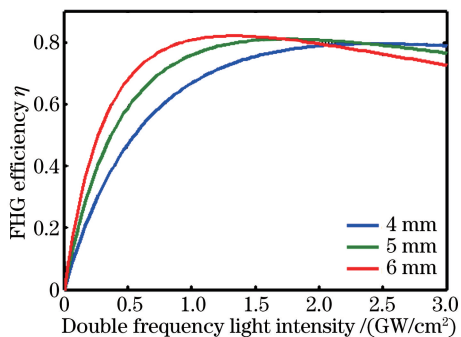


图 8 在 NCPM 条件下,三种不同长度的 DKDP 晶体在四倍频转换效率随倍频光强的变化

Fig. 8 Conversion efficiency of fourth harmonic generation as a function of double frequency light intensity for three different length DKDP crystals under NCPM condition

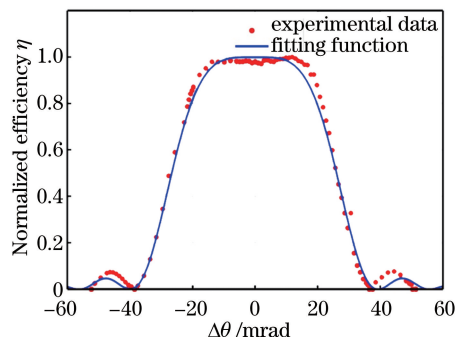


图 9 在 NCPM 条件下,DKDP 晶体实验测量和拟合得到的四倍频转化效率随光束入射角度的变化

Fig. 9 Conversion efficiency of fourth harmonic generation obtained by experimental measure and fit function versus light incident angle for DKDP crystal under NCPM condition

此外,实验还测试了四倍频激光的近场分布和时间波形,分别如图 10、11 所示,可以看出四倍频激光近场分布和时间波形都近似于基频,其中近场分布呈现较好的高斯分布,而时间波形脉宽为 5 ns,边缘更显陡峭,主要原因是四倍频转换效率  $\eta$  与  $I_\omega^4$  成正比( $I_\omega$  为基频光强)。

实验中 65% 掺氘 DKDP 晶体四次谐波转换的非临界相位匹配温度为  $(29.4 \pm 0.1)^\circ\text{C}$ ,而理论推算 65% 掺氘 DKDP 晶体实现四倍频输出的非临界相位匹配温度约为  $30^\circ\text{C}$ ,误差来源主要有:采用红外热像仪检测到的晶体温度与晶体本身的温度是有一定的误差,这些测量误差是在接受范围内;65% 掺氘 DKDP 晶体为快速生长晶体,晶体的掺氘量相对来说不够均匀,相位匹配温度对掺氘量非常敏感,这就可能导致了实验结果与理论推算结果有微小的差异。根据理论推算,在工程应用中对 DKDP 晶体掺氘的质量浓度均匀性要求比较严格,例如在  $30^\circ\text{C}$  下,当掺氘量  $x$  趋近于 65%,可以实现非临界相位匹配,如图 12 所示。匹配角对晶体的掺氘量有一定的敏感度,当晶体掺氘量增加 1% 时,匹配角相应增大  $0.9^\circ$ 。晶体在高强度激光抽运条件下<sup>[14]</sup>,允许接收角度大约为 6 mrad,掺氘变化量

$$\Delta x = \Delta\theta / (\partial\theta/\partial x), \quad (8)$$

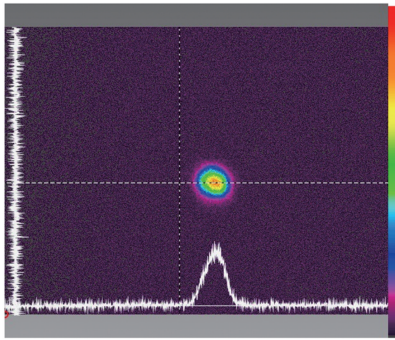


图 10 四倍频激光的近场分布

Fig. 10 Near field distribution of fourth harmonic laser

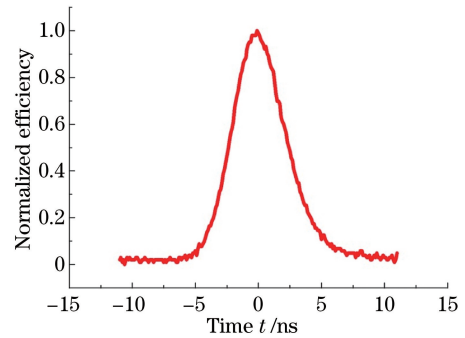


图 11 四倍频激光的时间波形

Fig. 11 Temporal waveform of fourth harmonic laser

由(8)式可以推算出晶体的掺氘变化量不能大于 0.4%，相对于三倍频过程所要求的 2% 掺氘均匀性<sup>[14]</sup>是比较苛刻的，因此在实际应用中需对晶体掺氘均匀性进行严格控制。

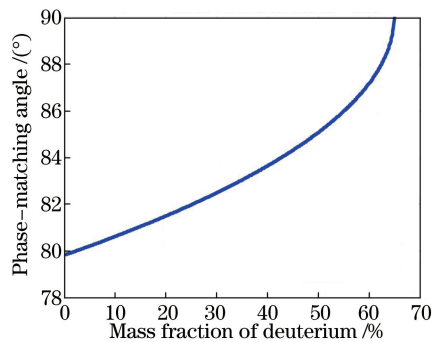


图 12 30 °C 下四倍频过程相位匹配角随 DKDP 晶体掺氘量的变化

Fig. 12 Phase-matching angle versus mass fraction of deuterium of DKDP crystal in fourth harmonic generation process at 30 °C

## 4 结 论

构建了 DKDP 晶体掺氘量和温度在非临界相位匹配下的关系模型，利用 65% 掺氘 DKDP 晶体实现了 1053 nm 激光非临界相位匹配的四次谐波转换。非临界相位匹配温度为  $(29.4 \pm 0.1)$  °C，与理论模拟结果基本吻合。实验测得接收角宽约为 55 mrad，低于临界相位匹配对角度的要求。针对四倍频激光在惯性约束核聚变中的应用前景，模拟了在  $2 \text{ GW/cm}^2$  高强度倍频光抽运下，掺氘 DKDP 晶体四倍频转换过程，其转换效率可高达 80%。实验结果表明，晶体掺氘均匀性是影响非临界相位匹配的一个关键因素，理论推算出工程应用中大口徑晶体掺氘均匀性需要达到 0.4%，这为后续大口徑四倍频技术的应用提供了技术依据。

## 参 考 文 献

- Haynam C A, Wegner P J, Auerbach J M, *et al.* National ignition facility laser performance status[J]. *Applied Optics*, 2007, 46(16): 3276-3303.
- Kirkwood R K, Moody J D, Kline J, *et al.* A review of laser-Plasma interaction physics of indirect-drive fusion[J]. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 2013, 55(10): 103001.
- Li Zhichao. Experimental research on large-scale laser-plasma interactions [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2011.  
李志超. 大尺度激光等离子体相互作用的实验研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2011.
- Li Xin, Hao Liang, Wu Changshu, *et al.* Study of methods to reduce SRS of inner beams in ICF ignition hohlraums[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2015, 27(5): 052001.  
李欣, 郝亮, 吴畅书, 等. ICF 点火靶内环激光 SRS 抑制方法理论研究[J]. *强激光与粒子束*, 2015, 27(5): 052001.
- Wang Jian, Cai Dafeng, Gu Yuqiu, *et al.* Simulation of stimulated Raman backscatter from interaction between

- ultrashort, ultrahigh intensity laser and tenuous plasma[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2008, 20(1): 79-82.
- 王 剑, 蔡达锋, 谷渝秋, 等. 超短超强激光与稀薄等离子体相互作用背向受激 Raman 谱特性模拟[J]. 强激光与粒子束, 2008, 20(1): 79-82.
- 6 Wang Zhebin. Thomson scattering of laser plasmas in relevance to inertial confinement fusion[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2006.
- 王哲斌. 激光聚变等离子体 Thomson 散射诊断[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2006.
- 7 Glenzer S H, Weiland T L, Bower J, *et al.* High-energy  $4\omega$  probe laser for laser-plasma experiments at Nova[J]. Review of scientific Instruments, 1999, 70(1): 1089-1092.
- 8 Xiang Yong, Yuan Xiaodong, Xu Bing, *et al.* Second harmonic probe system for laser plasma diagnostics experiment[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2000, 12(s1): 201-204.
- 向 勇, 袁晓东, 徐 冰, 等. 用于激光等离子体诊断实验的二倍频探针光系统[J]. 强激光与粒子束, 2000, 12(s1): 201-204.
- 9 Jiang X Q, Liu D, Ji L L, *et al.* Laser induced damage of  $\text{SiO}_2$  and  $\text{CaF}_2$  under 263 nm[C]. SPIE, 2015, 9532: 95320C.
- 10 Ji S H, Zhang S J, Xu M X, *et al.* Non-critical phase-matching conditions for fourth harmonic generation of DKDP crystal [J]. Optical Materials Express, 2012, 2(6): 735-739.
- 11 Yang S T, Hennesian 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.
- 12 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, *et al.* Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. Physics Review, 1962, 127(6): 1918-1939.
- 13 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 America B, 1992, 9(7): 1118-1127.
- 14 Ji Lailin. The study of harmonic generation and precision diagnostic techniques of high power driver [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2014: 29-33.
- 季来林. 高功率激光驱动器谐波转换与精密诊断测量研究[D]. 北京: 中国科学院大学, 2014: 29-33.