



·惯性约束聚变物理与技术·

高功率钕玻璃激光系统低时间相干光频率 转换技术研究进展*

季来林, 赵晓晖, 刘 栋, 夏 兰, 高妍琦, 崔 勇, 饶大幸, 冯 伟,
刘佳妮, 李小莉, 刘 佳, 史海涛, 王 韬, 杜鹏远,
张天雄, 隋 展, 马伟新, 朱 俭

(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: 低时间相干脉冲可有效提高激光与等离子体相互作用中参量不稳定性阈值, 但高效频率转换难题是实现其工程应用瓶颈之一。系统分析了高功率激光驱动器已有的各类低时间相干脉冲频率转换技术的特性, 并基于数值模拟和实验分析了部分掺氘 DKDP 晶体用于超辐射光倍频、三倍频的特性与工程应用可行性, 结果表明掺氘 17% 左右 DKDP 晶体可以提高钕玻璃系统超辐射光的倍频效率, 理论转换效率可达到约 80%, 10% 梯度掺氘 DKDP 晶体则可实现 5 THz 带宽三倍频输出。

关键词: 频率转换; 超辐射光; 谱非相干光; 惯性约束聚变; 掺氘

中图分类号: O437.1

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202032.200103

Research progress of low-temporal-coherence light frequency conversion technology for high power Nd:glass laser system

Ji Lailin, Zhao Xiaohui, Liu Dong, Xia Lan, Gao Yanqi, Cui Yong, Rao Daxing, Feng Wei,
Liu Jiani, Li Xiaoli, Liu Jia, Shi Haitao, Wang Tao, Du Pengyuan,
Zhang Tianxiong, Sui Zhan, Ma Weixin, Zhu Jian

(Shanghai institute of laser plasma, CAEP, Shanghai 201800, China)

Abstract: Low temporal coherence pulse can effectively increase the threshold of parametric instabilities in the laser and plasma interaction. However, frequency conversion efficiency is one of the bottlenecks in its engineering application. The characteristics of frequency conversion technologies of various low-coherence pulse for the high-power laser drivers are summarized in this paper, and based on numerical simulations and experiments, application feasibility of partial deuterium DKDP crystals for frequency doubling and tripling of super-luminescent light are analyzed in detail. The results show that 17% deuterium DKDP crystals can be used for efficient frequency doubling of super-luminescent light in neodymium glass systems, and the conversion efficiency can reach about 80%. 10% gradient deuterium DKDP crystals can be used for triple frequency of 5 THz bandwidth.

Key words: frequency conversion; super luminescent light; spectral incoherent broadband pulse; laser inertial confinement fusion; deuterium

高亮度、高相干性是激光最显著的特性, 但在激光惯性约束聚变研究中, 高相干性却会显著影响激光与靶丸的相互作用^[1-2]。激光驱动器焦斑的衍射极限 DL ($\sim 10 \mu\text{m}$) 远小于靶丸尺寸 d ($\sim 1 \text{mm}$), 而其相干时间 τ_c ($\sim 10 \text{ps}$) 又远大于激光与等离子体相互作用中各种流体力学、非线性参量不稳定性响应时间 ($100 \text{fs} \sim 1 \text{ps}$), 在直接驱动靶过程中, 靶面辐照不均匀性和参量不稳定性将导致激光能量无法有效、对称沉积到等离子体中^[3-5], 为实现靶面均匀对称辐照并抑制各类激光与等离子体相互作用中的不稳定性, 目前发展了多种技术用于控制焦斑时空特性^[6], 如使用列阵透镜^[7]或连续相位板^[8]等对光束空域波前进行调制(调制特征尺度 a 一般为 cm 量级), 以获得与靶丸

* 收稿日期: 2020-05-01; 修订日期: 2020-07-25

基金项目: 国家重大科技专项 (GFZX0205010402.1, GFZX0205010403.1)

作者简介: 季来林 (1980—), 男, 博士, 副研究员, 从事高功率激光技术与非线性光学应用研究; jsycjll@siom.ac.cn.

匹配的焦斑尺寸。即便如此,当驱动激光的带宽较窄时,靶面仍将出现大量的散斑,会诱发激光等离子体相互作用中的流体力学不稳定性,因此现役高功率固体激光驱动器普遍采用了角谱色散匀滑技术^[9-11],即通过相位调制器将钕玻璃激光带宽展宽至 30~100 GHz,并经光栅色散将脉冲时间啁啾转换成空间啁啾,在靶面形成动态散斑,基于时间积分效应抑制靶面细微尺度上的强度涨落,以控制激光驱动中的流体力学不稳定性。由于光束带宽只有 100 GHz 左右,一般需要 60 ps 以上积分时间才能实现理论上匀滑效果,因此在 1 ps 或更短时间尺度上仍存在很高强度起伏。当散斑强度超过激光与等离子体相互作用非线性过程的参量不稳定性阈值时(约 10^{15} W/cm²),就会诱发受激拉曼散射、受激布里渊散射、双等离子体波衰变等非线性效应,导致激光能量的耗散、靶丸预热、内爆产额降低等。国际上的“点火”实验结果表明,当前技术途径尚不足以抑制各类激光与等离子体相互作用中的不稳定性,需要探索新的激光相干性调控技术途径,实现更低的时间相干性^[12-20]。最近, R. K. Follett 等人^[17]研究认为受激拉曼散射阈值 $I_{\text{th}}^{\text{SRS}}$ 和双等离子体衰变阈值 $I_{\text{th}}^{\text{TPD}}$ 与驱动激光相干时间 τ_{co} 密切相关($I_{\text{th}}^{\text{SRS}} \sim \tau_{\text{co}}^{-1/3}$, $I_{\text{th}}^{\text{TPD}} \sim \tau_{\text{co}}^{-1/2}$),若驱动激光的相干时间小于等离子体中参量不稳定性增长时间,则可大幅度提高不稳定性产生的阈值。因此为有效抑制激光与等离子体相互作用中参量不稳定性,需要将 $\Delta\omega/\omega$ 增加至 1% 左右,即谱宽达到 2.7 THz(10 nm, 1ω),倍频或三倍频后光谱宽带可达到 5~10 THz,但只有在驱动激光为连续谱或光谱相位随机时才能很明显地抑制不稳定性增长,而啁啾展宽脉冲难以达到预期的抑制效果^[17]。

传统高增益钕玻璃激光系统受限于放大过程中增益窄化和三倍频效率等因素,激光谱宽一般不大于 100 GHz (3ω)^[21],其相对谱宽只有 $\Delta\omega/\omega \sim 0.01\%$,因此如何实现低时间相干光(宽带)的高效放大和高效谐波转换是影响高功率激光驱动器发展的核心问题之一。增益窄化补偿可有效提升钕玻璃系统激光谱宽,如 Texas Petawatt Laser 装置基于钕玻璃放大器实现 160 J/13 nm(3.5 THz)的啁啾脉冲输出,文献 [22] 基于钕玻璃系统放大超辐射光脉冲,实现 2.7 THz 带宽的基频输出;而文献 [23] 则基于 526.5 nm 光泵浦,通过参量放大方式实现 60 nm 带宽自发辐射光或多纵模光(光谱非相干)放大。这两种技术途径都可以实现低时间相干脉冲放大,但受限于 KDP 晶体的色散特性,三倍频高效转换的带宽只有 100 GHz(泵浦光强约 3 GW/cm², 70% 转换效率对应基频带宽),倍频高效转换带宽约 1 THz(定义同上),因此频率转换是低时间相干光走向工程应用的一个巨大瓶颈。本文首先对高功率激光驱动器的低时间相干光频率转换系统的研究历史和进展做简要回顾,然后详细介绍部分掺氘 DKDP 晶体超辐射光倍频特性和工程应用进展,最后对低相干宽带光三倍频技术发展进行展望。

1 钕玻璃激光系统低时间相干光的频率转换技术研究历史

1961 年 Peter Franken 等首先发现激光的倍频现象^[24]。1962 年 N. Bloembergen 等对非线性频率转换给出较完整的理论描述^[25],提出了高效频率转换中的一些规则,包括能量守恒和动量守恒。以 KDP 晶体中 I 类相位匹配倍频为例,频率转换要求: $\hbar\mathbf{k}_{\omega}(\omega) + \hbar\mathbf{k}_{\omega}(\omega) = \hbar\mathbf{k}_{2\omega}(\omega, \theta)$, 其中 \hbar 为普朗克常量, \mathbf{k} 为对应频率的波矢量,有两个关键无量纲量: $\eta = C^2 I^2$ 和 $\delta = \Delta k l / 2$, 可表征谐波转换系统特性。 η 表征泵浦强度, C 是有效非线性作用参数, I 为泵浦光强, l 为晶体厚度,高效转换要求 η 在 4~5 之间, δ 表征相位失配,高效谐波转换要求失谐量 $\delta \ll \pi/10$, 其中 $\Delta k(\omega, \theta) = 4\pi[n(2\omega, \theta) - n(\omega)]/\lambda$, 为波矢失配量,在室温条件下,可以将 Δk 在相位匹配附近处做泰勒展开

$$\Delta k(\theta, \omega) = \frac{\partial \Delta k(\theta, \omega)}{\partial \theta} \Big|_{\theta=\theta_{\text{pm}}, \omega=\omega_0} (\theta - \theta_{\text{pm}}) + \frac{\partial \Delta k(\theta, \omega)}{\partial \omega} \Big|_{\theta=\theta_{\text{pm}}, \omega=\omega_0} (\omega - \omega_0) + \dots \quad (1)$$

式中: θ_{pm} 为 ω_0 对应的相位匹配角。根据公式(1)可知,任何的波前畸变或光谱展宽都将降低频率转换效率,但也可以推断出如果对光束进行调控,使不同波长光束沿不同的角度入射到晶体,或晶体色散量足够小、宽带脉冲也可获得足够高的转换效率。目前提高宽带脉冲频率转换效率方法据此大体分成两类:一是采用特殊的几何结构或排布补偿光谱、角谱展宽所引入的相位失配,包括消色差相位匹配,多块晶体级联,啁啾准相位匹配,切伦科夫相位匹配等^[26-32],这些方法在实际使用中需要严格调整对准,插入损耗大,损伤阈值低,转换效率一般低于理论极限值;另一类是所谓的非临界波长相位匹配,即给定的非线性晶体在一些特殊波长处 $\partial \theta_{\text{p}} / \partial \lambda = 0$ (θ_{p} 为波长 λ 时的相位匹配角),此时非线性过程接受带宽将与 \sqrt{l} 成反比,如 20 mm 厚 KDP 晶体在 1030 nm 处,高效频率转换带宽可达到数十 nm。

在激光惯性约束聚变驱动器系统中,目前频率变换非线性晶体主要是 KDP 和部分掺氘 DKDP,短期内也难以被取代,低相干光频率转换研究主要是基于该类晶体展开,主要研究历史与进展综述如下。

1.1 基于晶体级联方式实现宽带脉冲频率转换

1990 年,美国海军实验室在 PHAROS III 开展了基于正交级联的 II 类相位匹配的多纵模倍频实验^[33]。两块晶

体正交放置,如图1所示,第一块晶体中“o”光将在第二块晶体中变成“e”光,当第二块晶体厚度为第一块晶体的两倍时,可实现基频光“o”光和“e”光时间走离最佳补偿。实验将多纵模振荡器输出种子光注入钽玻璃激光放大器,其中基频带宽最大为810 GHz,在1 GW/cm²泵浦光强下实现了55%转换效率。该方案主要优点是拥有较大角度接收范围和较大的强度动态范围。将第一块晶体与第二块晶体向相反方向失谐,以对应不同的匹配波长,经过适当优化,可以实现2.7 THz谱宽的倍频^[34]。实验中采用谱宽860 GHz(3.2 nm)啁啾展宽脉冲泵浦,实现了接近60%转换效率,输出倍频谱宽1.7 GHz(1.6 nm)。该方案输出的倍频光是随机椭圆偏振光,且在传输过程中会产生严重的偏振干涉,并导致时间波形畸变。

1997年,D. Eimerl等提出通过晶体级联方式可实现约270 GHz谱宽的钽玻璃激光三倍频方案^[35],具体如图2所示。1998年报道了相关实验结果^[36],其原理类似于准相位匹配,不同于前述的正交级联方案,两块晶体中非线性过程是互相关联的。当第一块三倍频晶体三波的相位差 $\Delta\phi$ 达到 π 时将会产生“倒流”,即三倍频光会回流到基频和倍频,而两块晶体之间间隙引入空气色散相位差,可补偿第一块晶体中失谐量,从而抑制第二块晶体的“倒流”效应,理论上该方式可以实现谱宽270 GHz的钽玻璃激光高效三倍频。如前所述,该类方法要求严格控制晶体姿态和光束指向、晶体间距,任何微小偏离都会引起效率大幅度抖动,具体工程应用中性能尚未有报道。

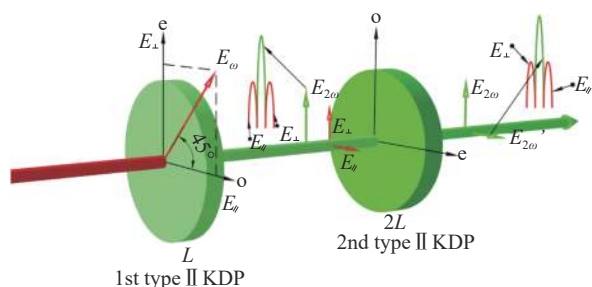


Fig. 1 Layout of Second harmonic generation with quadrature type II KDP

图1 正交级联KDP二类相位匹配倍频

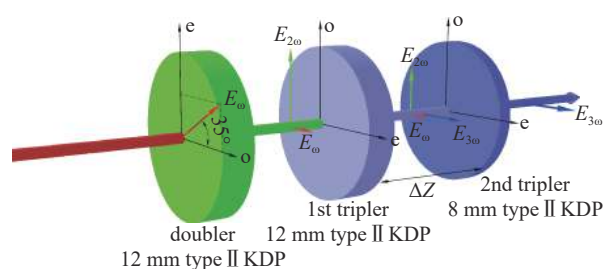


Fig. 2 Layout of third harmonic generation with double type II KDP

图2 两块II类相位匹配KDP晶体级联三倍频

1.2 基于角谱色散补偿实现宽带脉冲频率转换

1990年,R.W. Short等详细分析了角色散用于宽带脉冲频率转换一般特性^[37]。如图3~4所示,基于光栅角色散,不同频率光将沿相应相位匹配方向传输,该方法能很好补偿相位失配一阶项。1992年,M. D. Skeldo等进一步简化模型^[38],并基于带宽675 GHz啁啾脉冲进行了原理验证,在弱信号放大条件下三倍频信号提升了2.5倍,整个啁啾脉冲角度匹配特性类似于一束窄带激光脉冲。1993年,日本GEKKO XII装置利用钽玻璃激光放大系统放大自发辐射光,获得谱宽220 GHz低相干光,将谱色散匀滑光栅与倍频系统结合使用,光栅色散量为239 $\mu\text{rad}/\text{nm}$ (空气中),在0.3 GW/cm²光强泵浦下获得50%的转换效率^[39]。

1996年,法国PHEBUS装置^[40]也有类似设计。多模振荡器输出种子经钽玻璃系统放大输出后,首先经过光栅对引入空间啁啾,即光束截面上不同位置对应不同的频率单色光,下游放置柱透镜引入角色散,不同于GEKKO XII光栅色散,该角色散量并不是常数。谱宽810 GHz的光束实现了30%的倍频转换效率,较低的转换效率可能是系统的复杂性以及光束质量等原因造成的。

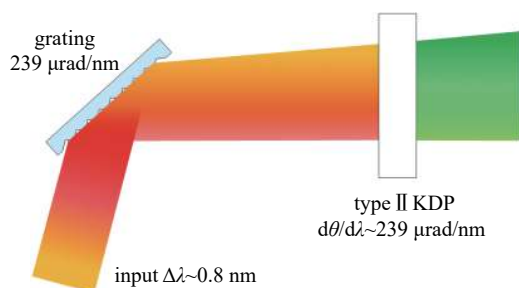


Fig. 3 Layout of type II KDP doubler with angular spectrum dispersion by grating

图3 光栅角色散补偿II类相位匹配KDP晶体倍频

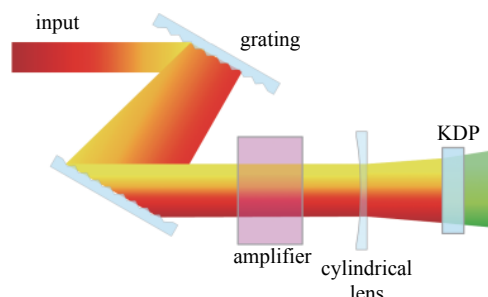


Fig. 4 Layout of type I KDP doubler with angular spectrum dispersion by cylindrical lens

图4 柱透镜角色散补偿I类相位匹配KDP晶体倍频

这些工程实践证明,角谱色散补偿方法面临系统调节复杂、可靠性低等问题,特别需要指出的是在泵浦带宽较大时,三倍频系统角色散补偿量将达到数 mrad/nm 量级,一般需要在光束下游放置光栅以压缩输出倍频或三倍频光束的发散角,大口径光栅的损伤阈值将会制约输出通量,另外当带宽变大或脉冲的啁啾率增加后,相位失配展开的二次项会变大,该方法将很难完全补偿相位失配。

1.3 基于时间啁啾补偿实现宽带频率转换

1996年,Alain等^[41-42]和钱列加^[43]都提出了一种基于时间啁啾补偿实现宽带频率转换方式。如图5所示,II类KDP晶体在匹配角为 59° 时,满足相位匹配条件的基频光波长与倍频光波长近似呈线性关系,只要参与和频的两束光的线性啁啾系数满足一定的条件,就可以实现高效和频。F. Raoult等在1999年开展了验证实验^[42],实现了约3 THz谱宽三倍频输出,且三倍频脉冲可压缩至220 fs,但是该方式一直未见成功应用于高功率激光装置。另外如前所述该种方式和频产生脉冲仍是线性啁啾脉冲,并不能很好地满足物理实验需求。

不同于这类复杂的啁啾脉冲调控和频方式,陈英等人^[44]提出基于窄带基频和宽带倍频光组合和频,该方式和频过程群速度差只是传统宽带脉冲和频的约15%,可将钕玻璃激光系统高效三倍频转换带宽提升至约300 GHz(基频),相对而言更具有工程应用价值,只是带宽可能离物理需求仍有差距。

1.4 基于材料结构调控实现宽带频率转换

H. Suchowski等^[45]提出基于晶体渐变折射率调控实现非线性参量过程相位失配容差提升,如对LBO晶体施加纵向梯度温度场,使匹配波长随晶体厚度方向渐变,该方法可实现数THz脉冲的倍频,区别于传统的准相位匹配等概念,称为“绝热”相位匹配,核心要求相位匹配变化梯度足够小,具体概念如图6所示,钱列加等也提出过在KDP晶体里通过“级联”掺氙实现宽带三倍频方案,但主要问题在于折射率渐变非线性晶体很难生长,目前尚未有正式报道。

M. S. Webb等1992年报道通过调节掺氙量来改变部分掺氙DKDP晶体的折射率,12.4%掺氙DKDP晶体可在1054 nm附近实现I类相位匹配和群速度匹配,可实现10 nm以上带宽的倍频输出,2004年朱鹤元和郑万国等^[46-47]报道12%掺氙的DKDP实现1 μm 波段飞秒脉冲的高效倍频转换,证实室温条件下采用部分掺氙DKDP可实现钕玻璃激光高效大带宽高效谐波转换。本团队在这些工作基础上使用15%掺氙的DKDP晶体对谱宽为2.7 THz超辐射低相干脉冲进行倍频,实现了近70%的倍频转换效率。

另外俄罗斯V. G. Dmitriev等研究了钕玻璃激光系统输出多模光束的倍频^[48-49],实验中基频脉冲发散角0.5 mrad、谱宽700 GHz,基于KDP实现了52%倍频转换效率(不包含晶体的吸收和其他损耗,实际转换效率不超过45%,甚至更低),其研究认为低相干光倍频理论和实验并不相符,需要进一步开展深入研究。

综上宽带脉冲的高效频率转换不仅在高功率激光驱动器研究领域得到大量关注,而且也是非线性光学应用研究的一个“盲点”,可用于高功率激光工程的可靠方案仍有待开发验证。此外相较于三倍频,低时间相干光倍频短期内更具有工程应用可行性和价值,下面将详细介绍本课题组在该研究方面获得的进展。

2 超辐射光高效倍频研究与工程应用

2.1 基于超辐射光放大的钕玻璃低时间相干激光新技术

超辐射光是指利用半导体放大的自发辐射光,拥有半导体激光器高亮度、大功率特性以及类似于发光二极管的谱宽,属于自发辐射放大光一种,前文日本GEKKO XII装置则采用棒状放大器放大自发辐射光作为后续放大器种子源,也是自发辐射放大光中一种,只是增益介质不一样,文献^[23]则采用光纤放大的自发辐射光,这三类光束都是自发辐射光放大。从频谱域观点看,自发辐射放大脉冲的光谱相位在 $[-\pi, \pi]$ 随机均匀分布,所以C. Dorrer等

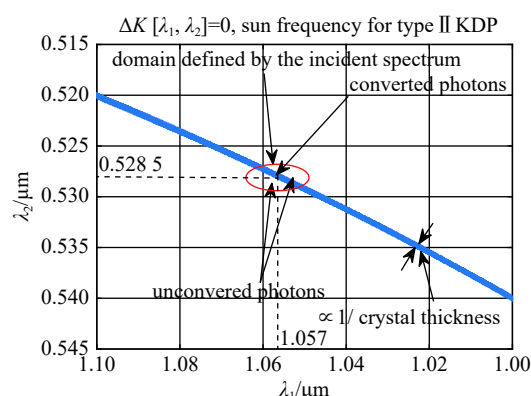


Fig. 5 Phase-matching curve for frequency tripling of pulses near 1057 nm in a KDP crystal type II cut at angle 59.07°

图5 匹配角 59.07° II类KDP晶体三倍频在1057 nm附近相位匹配特性

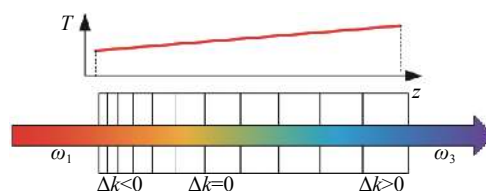


Fig. 6 Conception of adiabatic processes in frequency conversion

图6 绝热相位匹配频率转换过程概念

人又将之称为谱非相干脉冲(SIBP)^[23],这与锁模激光脉冲以及展宽后啁啾宽带脉冲有本质区别,然而它们都具有较大带宽,均属于为低时间相干光。

由发光半导体产生超辐射光脉冲具有高亮度和很好稳定性,根据文献[20]论述,超辐射脉冲时间整形并不会影响脉冲的光谱特性,是非常理想的激光惯性约束聚变驱动种子源,崔勇、高妍琦等^[22]近期基于钽玻璃系统实现超辐射光的放大,输出谱宽大于2.7 THz(10 nm),目前激光输出通量已达到 $4 \text{ J/cm}^2@3 \text{ ns}$,该方案极有可能为高功率激光驱动器的发展提供了一条新的途径,但需要解决频率转换问题,高效倍频相较于三倍频更容易实现,因此我们系统地验证了超辐射光倍频的特性和工程可行性。

2.2 部分掺氘 DKDP 晶体的相位匹配特性与超辐射光的倍频

超辐射光对谐波转换过程的影响主要有两点:一是时域 的强度涨落会导致基频向倍频转换时,难以在所有时刻都保持高效(高效转换的强度动态范围有限);二是在晶体中群速度 走离将导致载波附加相位差,影响转换效率,甚至产生谐波 倒流。因此需要尽量提高有效相互作用长度和减少脉冲 群速度走离,最佳方案为前述的部分掺氘 DKDP 晶体。室温 条件下 KDP 和 DKDP 相位匹配角度随波长的变化, KDP 晶体 I 类相位匹配 $d\theta_p/d\lambda = 0$, 对应的波长大致为 1034 nm, 而 DKDP 则接近 1200 nm, 根据 KDP 和 DKDP 折射率数据通过 插值计算不同掺氘量 DKDP 晶体对应的群速度匹配倍频波 长,结果如图 7 所示,室温条件下 16% 掺氘的 DKDP 晶体可 实现 1053 nm 激光的 I 类相位匹配和群速度匹配。

基于耦合波方程可以评估高效倍频转换所允许高效带宽,取泵浦激光的平均光强为 3 GW/cm^2 , 晶体厚度经过 优化取为 20 mm, 16% 掺氘 DKDP 晶体和 KDP 晶体的匹配带宽比较参看图 8 和表 1, 预期通过该方式可以实现 15 nm 带宽钽玻璃激光系统的超辐射光高效倍频,但超辐射特性并不同于啁啾脉冲或相位调制脉冲,因此需要仔细分析 倍频脉冲特性。

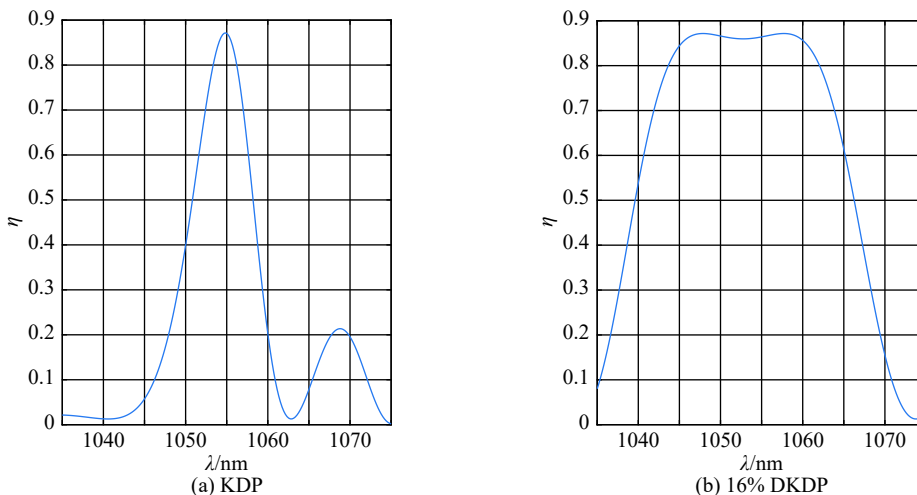


Fig. 8 Characteristics of doubling conversion efficiency with wavelength in partial deuterium DKDP

图 8 部分掺氘 DKDP 晶体的倍频转换效率随波长变化特性

表 1 晶体的转换带宽比较 ($I \sim 3 \text{ GW/cm}^2$, $l = 20 \text{ mm}$)

Table 1 Comparison of conversion bandwidth with partial deuterium KDP

No.	bandwidth @95% peak/nm	bandwidth @90% peak/nm	bandwidth @50% peak/nm
KDP	2	3	7
16%DKDP	15	17	26

2.3 超辐射光倍频过程模拟

超辐射光近似于混沌光,不具有解析形式,根据文献[20],采用数值方法构建一个时序样本表征其时间、光谱

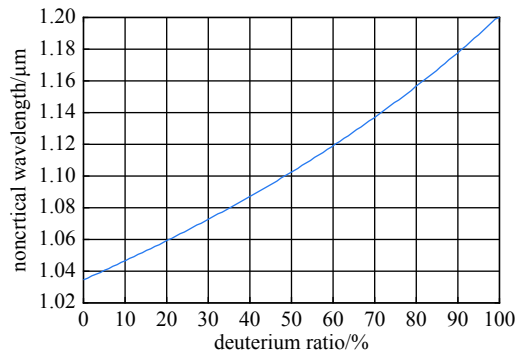


Fig. 7 Insensitive wavelength vs the deuterium ration in room temperature

图 7 室温条件下 DKDP 晶体非临界匹配波长随掺氘量的变化

整形后脉冲。具体形式如下,首先在频域构建电场白噪声复信号 $E_n^f(\Delta\nu)$ (其相位在 $[-\pi, \pi]$ 均匀分布,振幅 S 为 1 , $\Delta\nu = \nu - \nu_0$, ν_0 为载波频率, ν 为光频率),经傅里叶变换获得时域信号,然后在时域进行脉冲整形 ($G(t)$),获得需要的信号 $E_n^T(t)$ (本文以 3 ns 方波信号为例),然后再返回频率域,通过滤波整形 ($H(\nu)$) 获得需要光谱形状,作为频域信号 E_s^f ,其逆傅里叶变换则为时域信号,并经过 β 缩放保证能量守恒,即信号时间积分等于实际信号的平均通量 F ,满足如下关系

$$F = \int \frac{1}{2} \epsilon_0 c \left| \beta \text{ifft} \left(E_s^f(\Delta\nu) \right) \right|^2 dt \quad (2)$$

具体流程如图 9 所示,原则上信号脉宽远大于相干时间,传输中色散不会影响脉冲的特性。

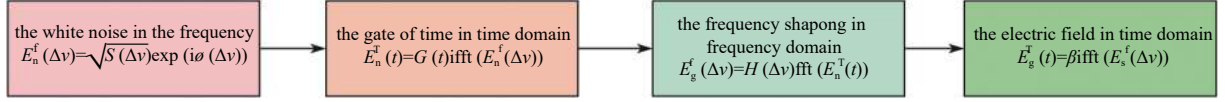


Fig. 9 Numerical simulation process of super luminescent diode(SLD)light pulse

图 9 超辐射光信号数值构建方法

$$\frac{\partial F}{\partial z} + \frac{1}{v_F} \frac{\partial F}{\partial t} - \frac{i}{2} k_1 \frac{\partial^2 F}{\partial t^2} = iK_{\text{SHG}} F^* H e^{i\Delta k z} - \frac{1}{2} \alpha_\omega F + \frac{i}{2} k_{10} \epsilon_0 c (\gamma_1 |F|^2 + 2\gamma_{12} |H|^2) F \quad (3)$$

$$\frac{\partial H}{\partial z} + \frac{1}{v_H} \frac{\partial H}{\partial t} - \frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2 H}{\partial t^2} = iK_{\text{SHG}} F F e^{-i\Delta k z} + \frac{i}{2} k_{20} \epsilon_0 c (2\gamma_{12} |F|^2 + \gamma_2 |H|^2) H \quad (4)$$

方程(3)中 F 为基频, H 为倍频电场, Δk 为载波的相位失配量, k_{10} 为对应载波的真空波矢量, K_{SHG} 为有效非线性作用量(考虑折射率变化),计算中取值为 $0.8191 \times 10^{-6} \text{ m/V}$, ϵ_0 为真空介电常数, $\epsilon_0 = 8.854187817 \times 10^{-12} \text{ F/m}$, c 为真空光速,其他各参量的数值见表 2。

表 2 方程 (3) 中各物理量数值

Table 2 Value of parameters in equation (3)

$\alpha_\omega / (\text{cm}^{-1})$	$\gamma_1 / (\text{cm}^2 \cdot \text{GW}^{-1})$	$\gamma_2 / (\text{cm}^2 \cdot \text{GW}^{-1})$	$\gamma_{12} / (\text{cm}^2 \cdot \text{GW}^{-1})$	$v_F / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	$v_H / (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$	$k_1'' / (\text{fs}^2 \cdot \text{mm}^{-1})$	$k_2'' / (\text{fs}^2 \cdot \text{mm}^{-1})$
0.058	2.3×10^{-7}	3.5×10^{-7}	0.08×10^{-7}	$c/1.5227$	$c/1.5223$	-8.8	70.4

在此基础上根据耦合波方程(3)数值模拟超辐射光倍频的特性,需要注意信号取样的分辨率,本文中时间信号脉宽 3 ns , 取样窗口 6 ns , 信号带宽 2.7 THz , 倍频后带宽为 5.4 THz , 则取样带宽至少为 10.8 THz , 因此取样点至少为 2^{16} 。

N31 型钕玻璃激光发射荧光谱峰值在 1053 nm 附近,但并不对称,为抑制宽带脉冲放大中增益窄化,需要对注入脉冲进行适当的光谱整形,放大后脉冲光谱将红移至 1057 nm 附近^[22],理论模拟显示, 16% 掺氙 DKDP 晶体可以实现中心波长为 1057 nm 超辐射光的高效倍频,模拟中泵浦平均光强为 0.75 GW/cm^2 , 脉宽 3 ns , 带宽 2.7 THz (10 nm), 晶体厚度 32 mm , 晶体表面 1% 损耗,理论计算倍频效率约 69% 。图 10(a)是模拟所得基频和倍频时间波形,为与后续实验有很好对比性,采用 15 GHz 的带宽滤波,数值模拟仍可见一定强度涨落;图 10(b)和(c)是基频和倍频光谱,采用了平滑均值滤波,基频光谱为 2.7 THz 准方波,倍频光谱相对于基频出现了畸变和窄化,具体原因如已发表文章^[47]所述,倍频光谱形状和基频光谱强度卷积一致,证明数值计算与理论解析之间有很好的 consistency。

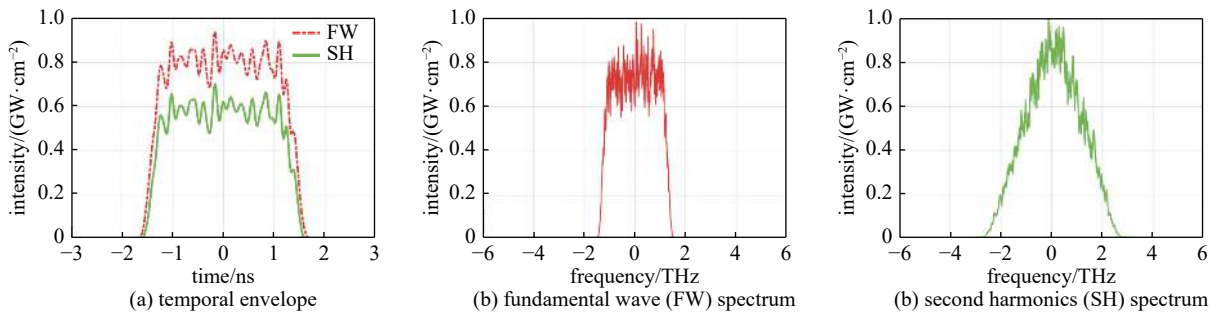


Fig. 10 Numerical simulation doubling characteristics of SLD pulse

图 10 超辐射光倍频过程的数值模拟结果

由于超辐射光的带宽远大于目前各类时间探测器的取样带宽,文献[23]采用70 GHz带宽示波器也难以分辨出SIBP脉冲时域细微结构,文献[23]模拟计算显示参量放大过程中饱和及走离效应会显著影响脉冲时域强度涨落统计特性,注入信号脉冲强度涨落统计接近偏振热光,即呈负指数分布且强度涨落均方差与平均值相等,参量饱和和放大后则趋于Rice分布,因为信号光放大后最大值被泵浦光钳制在确定幅度上,但模拟显示超辐射光倍频过程光强涨落统计特性会有变化,但并不剧烈,具体如图11所示,无论基频还是倍频脉冲的时域和频域统计特性仍近似负指数分布。

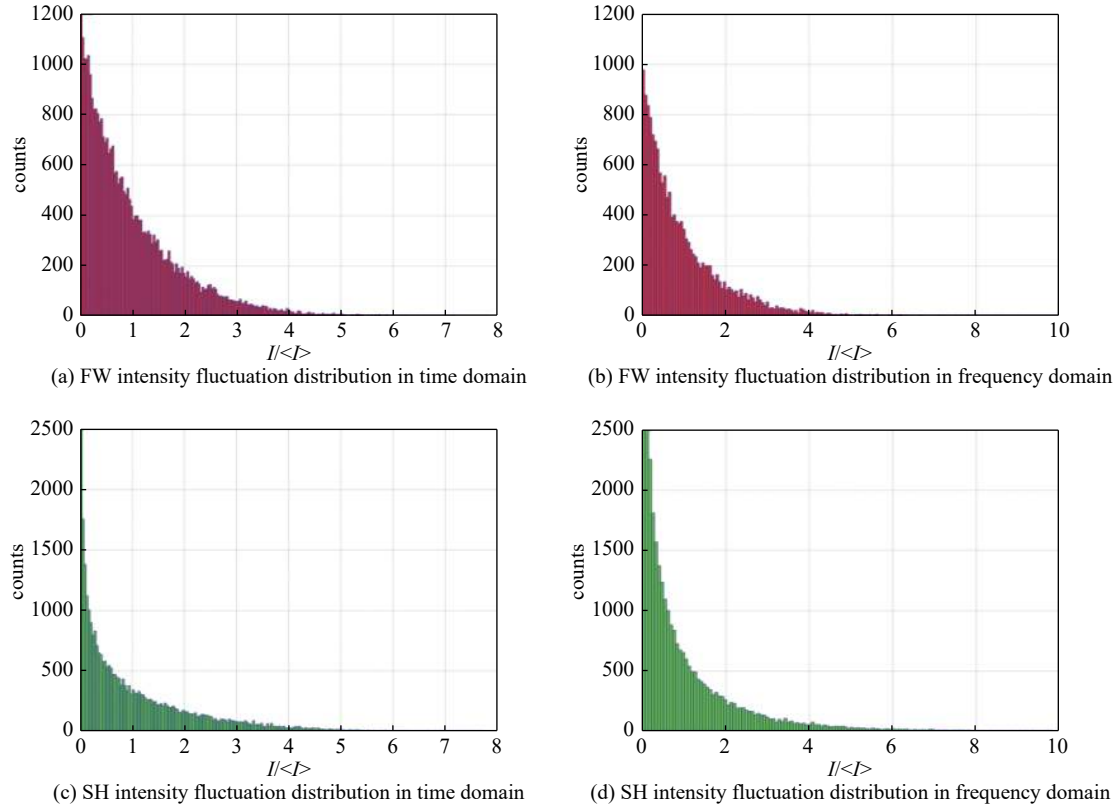


Fig. 11 Statistical distribution of intensity fluctuation in temporal and frequency domain with doubling process

图 11 超辐射光倍频过程基频和倍频的强度涨落统计分布

2.4 超辐射光倍频实验验证

基于文献[22]中超辐射光放大平台,目前已验证了超辐射光倍频特性。实验的排布如图12所示,基频口径约 $42\text{ mm} \times 42\text{ mm}$,近似为12阶超高斯分布,中心波长为 1057 nm ,谱宽约 2.7 THz (10.2 nm),实测相干时间为 318 fs ,远场近衍射极限。实验倍频晶体由山东大学孙洵课题组提供,为 32 mm 厚15%掺氘DKDP晶体,理论计算其非临界相位匹配波长接近 1053 nm ,虽然有所偏离 1057 nm 但并不影响实际使用,只需要轻微调整匹配角度,高效转换带宽足以与实验中基频带宽匹配,实验中最高泵浦光强约 0.75 GW/cm^2 。

实验结果如图13所示,基频与倍频均为 3 ns 方波,由于示波器带宽只有 4 GHz ,图13(a)是真实信号滤波后的,可以确定的是在百ps时间尺度上脉冲强度涨落基本是可以忽略的,图13(b)是实验测得倍频转换效率随入射基频能量的变化,相似条件下等厚KDP晶体倍频转换效率也显示在图中。DKDP晶体实验中获得最高转换效率约为70%,对应的基频能量 37 J (光强约 0.75 GW/cm^2),KDP最高转换效率只有55%,实验结果与理论计算有很好的的一致性,在模拟过程中晶体存在 $10\sim 20\text{ }\mu\text{rad}$ 的角度失谐,根据这个结果外推基频光强约 $1.5\sim 2\text{ GW/cm}^2$ 时,采用 20 mm 厚部分掺氘DKDP晶体,转换效率可以达到80%,图13(c)是基频与倍频的光谱,基频光谱宽带约 10.2 nm (2.7 THz),倍频光谱分布呈三角形,带宽 2.9 nm (3.1 THz),与理论分析一致,倍频过程充分体现了超辐射光的二阶统计特性,即主要是强度关联。图13(d)为迈克尔逊干涉仪测量获得的倍频脉冲相干度,其相干时间约为 300 fs ,

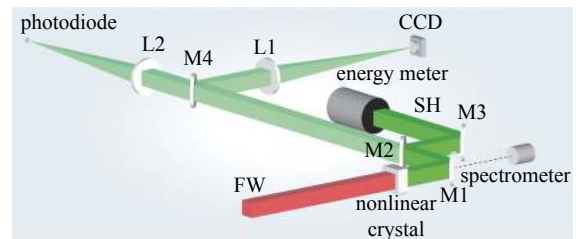


Fig. 12 Experimental setup

图 12 实验排布

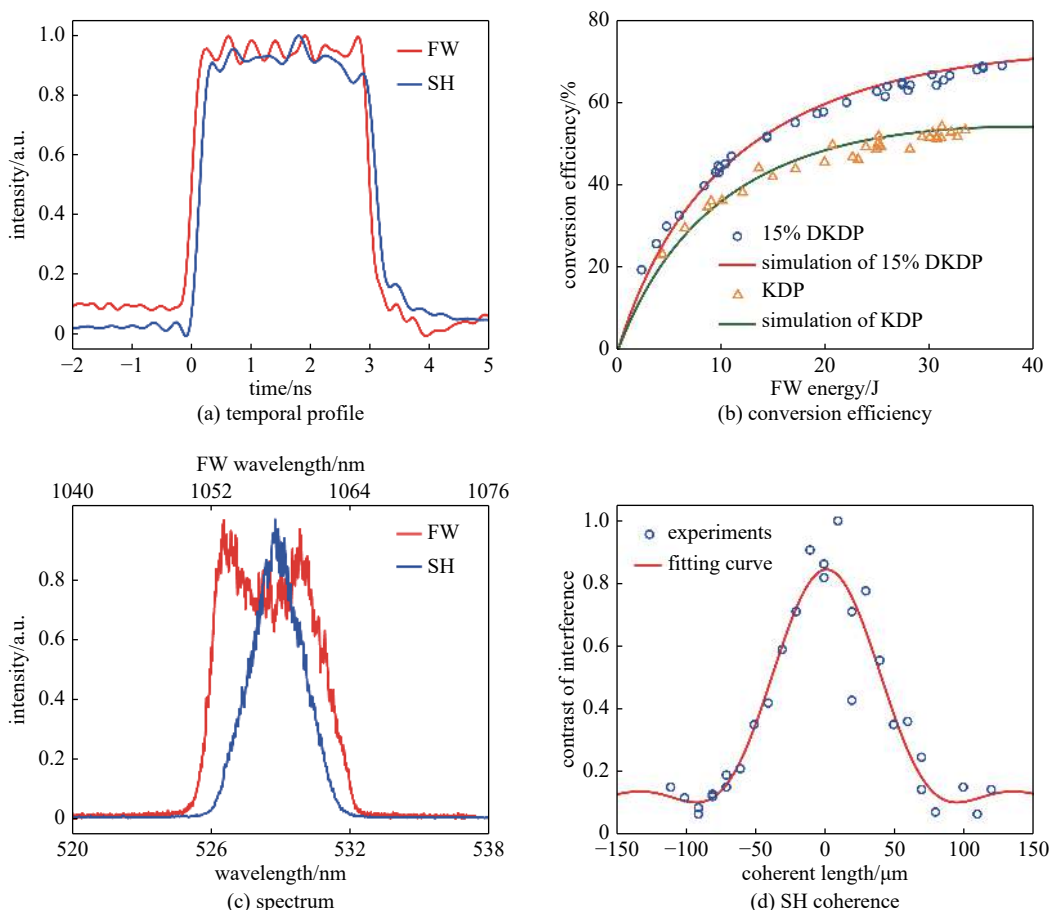


Fig. 13 Results of experiment

图 13 超辐射光倍频实验结果

与测得基频大体相当(318 fs), 光谱畸变并不会改变脉冲的相干长度, 而且倍频脉冲的相干度的边带相较于基频更低, 因为超辐射脉冲倍频光谱的傅里叶变换理论上是基频光谱傅里叶变换的平方, 必然会抑制边带的幅度。

2.5 低掺氘 DKDP 晶体初步工程应用

在 2019 年底, 山东大学提供了两块采用快速生长技术生长的 17% 掺氘 DKDP 晶体, 晶体口径 200 mm×200 mm, 初步的工程应用中倍频转换效率数据如图 14 所示。

17% 掺氘 DKDP 晶体可以有效提高超辐射光脉冲的倍频转换效率, 当泵浦光强达到约 1 GW/cm² (750 J), 倍频效率达到 60%, 且很快呈饱和状态。从已有实验数据分析, 17% DKDP 晶体的饱和效率要比同口径 KDP 晶体高接近 10%; 但是单纵模脉冲转换效率则相较于 KDP 晶体低 15% 左右, 主要原因是目前晶体光轴一致性较差, 导致不同区域转换效率出现较大差异, 从而整体转换效率出现显著下降。图 15 为 17% 掺氘 DKDP 晶体基频、倍频的典型近场对比, 倍频近场有显著的区域差异, 这反应了晶体光轴一致性较差, 根据晶体调节数据推测, 倍频近场蓝色区域与浅黄色区域光轴偏差最大达到了 400 μrad(内部), 这可导致整体效率下降约 10%。

如图 14 所示, 在近似条件下单纵模脉冲转换效率甚至比超辐射脉冲更低, 原因是单纵模高效转换要求角度偏离匹配角度小于 50 μrad, 当偏离量达到 100 μrad 以上时, 转换效率不会大于 60%; 对于宽带脉冲, 不同波长可对应不同的相位匹配角度, 考虑平均效果, 匹配角度容宽要较单纵模脉冲大, 这也是图 14 中超辐射脉冲转换效率比单纵模脉冲略高的原因, 也反映了低掺氘晶体可以有效提高超辐射脉冲的转换效率。

目前工程初步验证表明低掺氘 DKDP 晶体可以实现 1 μm 波段超辐射光脉冲高效倍频, 但是快速生长晶体光

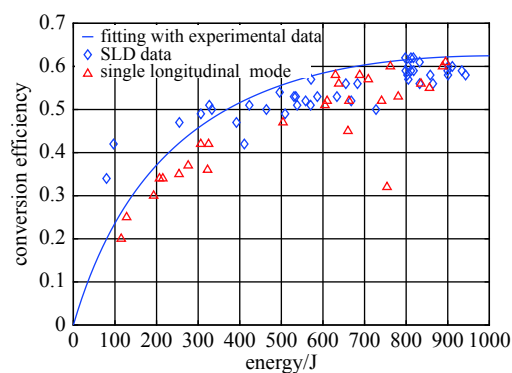


Fig. 14 Conversion efficiency with large aperture 17% deuterium DKDP

图 14 大口径 17% 掺氘 DKDP 晶体转换效率

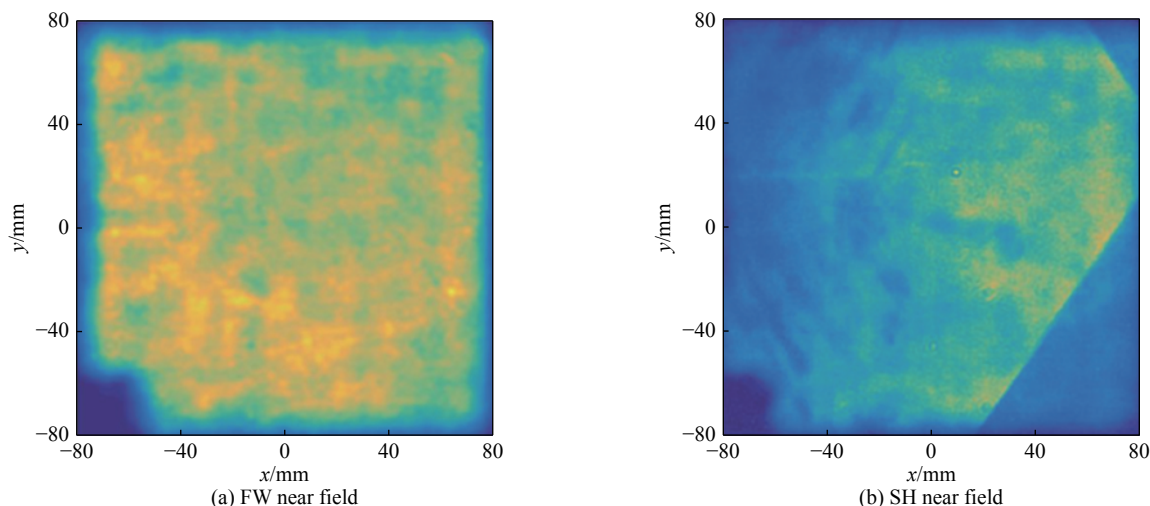


Fig. 15 comparisons of near field of FW&SH for 17% deuterium DKDP.

图 15 17% 掺氘 DKDP 晶体的基频与倍频近场对比

轴一致性较差严重制约了转换效率的提升,实际转换效率比理论预期低 15% 左右,亟需提高晶体的质量。

3 高功率激光驱动器低相干宽带光三倍频技术展望

超辐射光的钕玻璃放大和高效倍频技术将为光束特性调控提供一条可行途径,但激光惯性约束聚变始终青睐更高的光子能量,因此超辐射光的高效三倍频技术发展仍具有极大价值。文献 [22] 提出将基于角谱色散方式尝试 SIBP 脉冲的三倍频,但是文献 [37] 认为对于随机相位脉冲,角色散并不能有效改善脉冲的转换效率。因为光栅角色散主要是相位调制补偿,等效于一般的脉冲延迟群速度失配补偿,而 SLD 或 SIBP 光都存在较强烈的幅度调制,光栅角色散并不会很好改善这类脉冲三倍频转换效率,特别是当脉冲带宽变大至数 THz 后,等效失谐量的二阶项会很大,该方法将基本失效,因此光栅角谱色散并不适合目前的超辐射光放大技术。多块晶体级联三倍频方案允许最大带宽与单块晶体厚度成反比,为提升系统高效转换带宽必须减薄晶体厚度并增加晶体数量,基频带宽达到 1 THz 后,系统至少需要 3 块以上级联晶体,系统的复杂度将大幅增加,已有的工程应用并不成功。

因此,超辐射光高效三倍频还得期待新的晶体生长技术,并结合光场调控,才有可能实现。图 16 提出一种可行概念方案,在陈英等 [46] 宽窄光和频基础上结合晶体折射率梯度调控实现超辐射光高效三倍频,按前述分析,超辐射光倍频后 90% 能量对应带宽大致为 5 nm,将之与一束窄带的 1053 nm 光和频,三倍频晶体为 80 mm 厚 10% 梯度掺氘 DKDP 和频晶体(掺氘浓度线性变化),则输出三倍频带宽可以达到 2.2 nm(5.4 THz)。图 17 是该方案在 1.5 GW/cm² 超辐射倍频和 0.75 GW/cm² 窄带基频光泵浦下,理论计算转换效率随倍频波长的变化,结果显示该方案足以支撑目前的超辐射光的三倍频需求,该方案核心难点在梯度掺氘晶体生长,随着技术发展将越来越具有可行性 [50]。KDP 晶体折射率调控并不只有掺氘一条路径,还可以采用温度梯度调控以及电光调控等,总体而言,超辐射光的高效三倍频需要开发新的技术和依赖非线性晶体材料的发展。

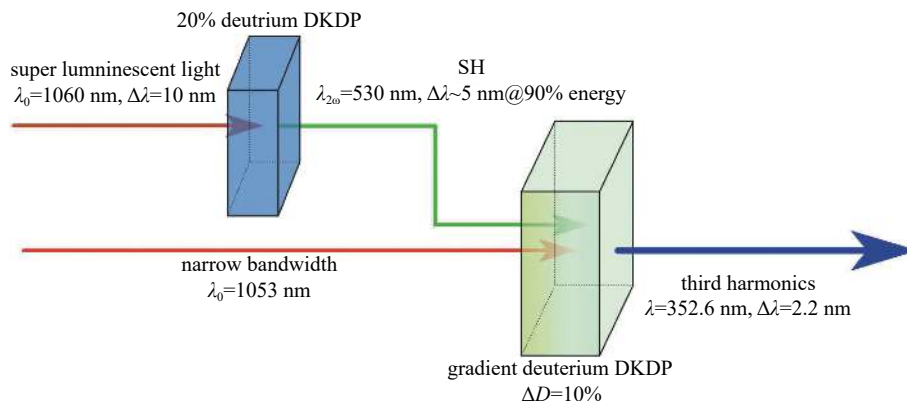


Fig. 16 Conception of third harmonics generation with gradient deuterium DKDP and sum frequency of broadband & narrow bandwidth

图 16 基于宽窄和频和梯度掺杂 DKDP 晶体概念方案

4 结 论

本文总结了用于惯性约束聚变研究的激光驱动器低时间相干脉冲频率转换技术研究历史和最新进展,系统分析了基于部分掺氘 DKDP 晶体实现超辐射光高效倍频和三倍频的可行性,并报道了大口径 17% 掺氘 DKDP 晶体应用于超辐射光倍频验证结果。超辐射光高效倍频效率理论可达 80% 以上,但是目前受限于大口径晶体光轴方向的不一致性,验证中效率约 60%,亟需提高大口径低掺氘 DKDP 晶体的质量,同时需要积极探索 DKDP 晶体折射率调控新技术以实现超辐射光的高效三倍频。

致 谢 感谢山东大学孙洵老师和王圣来老师提供的低掺氘晶体和有关晶体特性和生长技术讨论。

参 考 文 献:

- [1] Fedotov S I, Feoktistov L P, Osipov M V, et al. Lasers for ICF with a controllable function of mutual coherence of radiation[J]. *Journal of Russian Laser Research*, 2004, 25(1): 79-92.
- [2] Lindl J D, Amendt P, Berger R L, et al. The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the National Ignition Facility[J]. *Physics of Plasmas*, 2004, 11(2): 339-491.
- [3] Smalyuk V A, Shvarts D, Betti R, et al. Role of hot-electron preheating in the compression of direct-drive imploding targets with cryogenic D2 ablaters[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(18): 1459-1469.
- [4] Karasik M, Weaver J L, Aglitskiy Y, et al. Suppression of laser nonuniformity imprinting using a thin high-z coating[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 114: 085001.
- [5] Eimerl D, Campbell E M, Krupke W F, et al. StarDriver: a flexible laser driver for inertial confinement fusion and high energy density physics[J]. *Journal of Fusion Energy*, 2014, 33(5): 476-488.
- [6] Garanin S G, Derkach V N, Shnyagin R A. Formation of the uniform irradiation of a target in high-power laser facilities[J]. *Quantum Electronics*, 2004, 34(5): 427-446.
- [7] 邓锡铭, 梁向春, 陈泽尊, 等. 用透镜阵列实现大焦斑面的均匀照射[J]. *中国激光*, 1985, 12(5): 3-6. (Deng Ximing, Liang Xiangchun, Chen Zezun, et al. Using lens array to achieve uniform illumination of large focal spot[J]. *China Laser*, 1985, 12(5): 3-6)
- [8] Marozas J A. Fourier transform-based continuous phase-plate design technique: a high-pass phase-plate design as an application for OMEGA and the National Ignition Facility[J]. *Journal of The Optical Society of America A-optics Image Science and Vision*, 2007, 24(1): 74-83.
- [9] Marozas J A, Kelly J H. Angular spectrum representation of pulsed laser beams with two-dimensional smoothing by spectral dispersion[J]. *LLE Rev*, 1999, 78: 62-81.
- [10] Regan S, Marozas J A, Kelly J, et al. Experimental investigation of smoothing by spectral dispersion[J]. *Journal of The Optical Society of America B-optical Physics*, 2000, 17(9): 1483-1489.
- [11] Regan S, Marozas J A, Craxton R S, et al. Performance of 1-THz-bandwidth, two-dimensional smoothing by spectral dispersion and polarization smoothing of high-power, solid-state laser beams[J]. *Journal of The Optical Society of America B-optical Physics*, 2005, 22(5): 998-1002.
- [12] Moody J D, Michel P, Divol L, et al. Multistep redirection by cross-beam power transfer of ultrahigh-power lasers in a plasma[J]. *Nature Physics*, 2012, 8(4): 344-349.
- [13] Betti R, Hurricane O A. Inertial-confinement fusion with lasers[J]. *Nature Physics*, 2016, 12(5): 435-448.
- [14] Glenzer S H, Froula D H, Divol L, et al. Experiments and multiscale simulations of laser propagation through ignition-scale plasmas[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(10): 716-719.
- [15] Labaune, Christine. Laser-driven fusion: Incoherent light on the road to ignition[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(10): 680-682.
- [16] Santos J E, Silva L O, Bingham R, et al. White-light parametric instabilities in plasmas[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98: 235001.
- [17] Follett R K, Shaw J G, Myatt J F, et al. Thresholds of absolute instabilities driven by a broadband laser[J]. *Physics of Plasmas*, 2019, 26: 062111.
- [18] Palastro J P, Shaw J G, Follett R K, et al. Resonance absorption of a broadband laser pulse[J]. *Physics of Plasmas*, 2018, 25: 123104.
- [19] Eimerl D, Skupsky S, Campbell E M. StarDriver: Recent results on beam smoothing and LPI mitigation[J]. *Journal of Physics Conference*, 2016, 717: 012015.
- [20] Dorrer C. Statistical analysis of incoherent pulse shaping[J]. *Optics Express*, 2009, 17(5): 3341-3352.
- [21] Spaeth M L, Manes K R, Bowers M, et al. National ignition facility laser system performance[J]. *Fusion Science and Technology*, 2016, 69(1): 366-394.
- [22] Cui Y, Gao Y, Rao D, et al. High-energy low-temporal-coherence instantaneous broadband pulse system[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(11): 2859-2862.
- [23] Dorrer C, Hill E M, Zuegel J D, et al. High-energy parametric amplification of spectrally incoherent broadband pulses[J]. *Optics Express*, 2020, 28(1): 451-

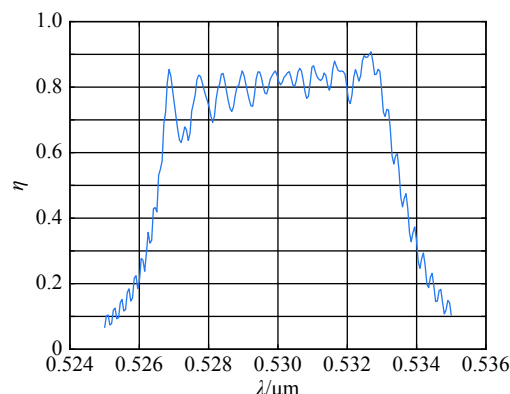


Fig. 17 Conversion efficiency vs the wavelength in gradient deuterium

图 17 梯度掺氘 DKDP 晶体的三倍频转换效率随波长变化

- 471.
- [24] Franken P A, Hill A E, Peters C W, et al. Generation of optical harmonics[J]. *Physical Review Letters*, 1961, 7(4): 118-119.
- [25] Bloembergen N, Pershan P S. Light waves at the boundary of nonlinear media[J]. *Physical Review*, 1962, 128(2): 606-622.
- [26] Martinez O E. Achromatic phase matching for second harmonic generation of femtosecond pulses[J]. *IEEE Journal Quantum Electronics*, 1989, 25(12): 2464-2468.
- [27] Richman B A, Bisson S E, Trebino V, et al. Efficient broadband second-harmonic generation by dispersive achromatic nonlinear conversion using only prisms[J]. *Opt Lett*, 1998, 23: 497.
- [28] Ashihara S, Shimura T, Kuroda K. Group-velocity matched second-harmonic generation in tilted quasi-phase-matched gratings[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2003, 20(5): 853-856.
- [29] Chen B Q, Zhang C, Hu C Y, et al. High-efficiency broadband high-harmonic generation from a single quasi-phase-matching nonlinear crystal[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115: 083902.
- [30] Zhang T R, Choo H R, Downer M C. Phase and group velocity matching for second harmonic generation of femtosecond pulses[J]. *Applied Optics*, 1990, 29(27): 3927-3933.
- [31] Brown M. Increased spectral bandwidths in nonlinear conversion processes by use of multicrystal designs[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(20): 1591-1593.
- [32] Wang G Y, Garmire E M. High-efficiency generation of ultrashort second-harmonic pulses based on the erenkov geometry[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(4): 254-256.
- [33] Pronko M S, Lehberg R H, Obenschain S P, et al. Efficient second harmonic conversion of broad-band high-peak-power Nd:glass laser radiation using large-aperture KDP crystals in quadrature[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990, 26(2): 337-347.
- [34] Ji Lailin, Zhu Baoqiang, Liu Chong, et al. Optimization of quadrature frequency conversion with type-II KDP for second harmonic generation of the nanosecond chirp pulse at 1053 nm[J]. *Chinese Optics Letters*, 2014, 12(3): 70-74.
- [35] Eimerl D, Auerbach J M, Barker C E, et al. Multicrystal designs for efficient third-harmonic generation[J]. *Optics Letters*, 1997, 22(16): 1208-1210.
- [36] Babushkin A, Craxton R S, Oskoui S, et al. Demonstration of the dual-tripler scheme for increased-bandwidth third-harmonic generation[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(12): 927-929.
- [37] Short R W, Skupsky S. Frequency conversion of broad-bandwidth laser light[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990, 26(3): 580-588.
- [38] Skeldon M D, Craxton R S, Kessler T J, et al. Efficient harmonic generation with a broad-band laser[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1992, 28(5): 1389-1399.
- [39] Nakatsuka M, Miyanaga N, Kanabe T, et al. Partially coherent light sources for ICF experiment[C]// Proc of SPIE. 1993, 1870: 151-162.
- [40] Videau L, Boscheron A C L, Garnier J C, et al. Recent results of optical smoothing on the Phebus laser[C]// Proc of SPIE. 1997, 3047: 757-762.
- [41] Boscheron A C, Sauteret C, Migus A, et al. Efficient broadband sum frequency based on controlled phase-modulated input fields: theory for 351-nm ultrabroadband or ultrashort-pulse generation[J]. *Journal of The Optical Society of America B-optical Physics*, 1996, 13(5): 818-826.
- [42] Raoult F, Boscheron A C, Husson D, et al. Ultrashort, intense ultraviolet pulse generation by efficient frequency tripling and adapted phase matching[J]. *Optics Letters*, 1999, 24(5): 354-356.
- [43] 钱列加. 宽频带激光的啁啾匹配型三次谐波转换[J]. *光学学报*, 1995, 15(6): 662-664. (Qian Liejia. Chirp-matched third harmonic conversion of broadband lasers[J]. *Acta Optics Sinica*, 1995, 15(6): 662-664)
- [44] 陈英, 王路露, 刘光灿, 等. 高功率钕玻璃激光的宽带谐波转换技术综述[J]. *激光与光电子学进展*, 2014, 51(2): 34-41. (Chen Ying, Wang Lulu, Liu Guangcan, et al. Survey on frequency conversion of broadband high power Nd:Glass laser[J]. *Progress in Laser and Optoelectronics*, 2014, 51(2): 34-41)
- [45] Rozenberg E, Arie A. Broadband and robust adiabatic second-harmonic generation by a temperature gradient in birefringently phase-matched lithium triborate crystal[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(13): 3358-3361.
- [46] Zhu H Y, Wang T, Zheng W G, et al. Efficient second harmonic generation of femtosecond laser at 1 μm [J]. *Optics Express*, 2004, 12(10): 2150-2155.
- [47] Zheng Wanguo, Qian LieJia, Yuan Peng, et al. Second harmonic generation of femtosecond laser at one micron in a partially deuterated KDP[J]. *Chinese Physics Letters*, 2006, 23(1): 139-142.
- [48] Dmitriev V G, Osipov M V, Puzyrev V N, et al. Nonlinear optical conversion of Nd:glass laser multimode radiation into the second harmonic in KDP crystal[J]. *Journal of Physics B*, 2012, 45: 165401.
- [49] Vasin B L, Korobkin Y V, Osipov M V, et al. Second-harmonic conversion of partially coherent radiation of neodymium glass laser[J]. *Bulletin of the Lebedev Physics Institute*, 2013, 40(7): 205-209.
- [50] Ji L, Zhao X, Liu D, et al. High-efficiency second-harmonic generation of low-temporal-coherent light pulse[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(17): 4359-4362.