

基于混频效应的宽带激光谐波转换理论^{*}

王 杰 姚建铨 于意仲 王 鹏 张 帆 王 涛

(天津大学精仪学院激光与光电子研究所, 教育部光电信息科学技术开放实验室, 天津 300072)

(2000 年 4 月 23 日收到, 2000 年 9 月 24 日收到修改稿)

提出了一种新的宽带激光谐波转换理论, 指出实际宽带激光谐波转换不能简单应用倍频理论, 提出同时存在不同波长之间满足和频相位匹配情况, 因而宽带谐波转换应该是一个倍频加和频的混合转换过程. 在合理设计下, 不同波长之间的和频效应可以在整个谐波转换中占主导地位, 突破了传统允许波长的限制, 这种理论和方法不仅适合二倍频, 同时适合三倍频等高次谐波转换.

关键词: 宽带激光, 谐波转换, 混频

PACC: 4279

1 引 言

宽谱带光谱的高效率倍频及三倍频具有重要的理论意义和潜在的实用价值, 尤其在解决激光受控核聚变的均匀照射问题上, 宽带激光的高效率频率变换一直是研究的重点之一. 长期以来, 宽带激光的倍频和三倍频都沿用了平面波的倍频理论, 由于受倍频过程的允许角和允许波长的限制, 使宽带激光倍频成为难题. 为了解决允许波长的限制, 人们研究了许多解决办法: 1) 角度色散补偿法(ASD)^[1], 它是通过色散元件使宽带激光的不同波长在空间上产生夹角, 使在晶体内部不同波长的角度不同, 合理设计使不同波长都满足相位匹配, 以增大倍频以及三倍频的允许带宽. 美国劳伦斯·利弗莫尔实验室利用光栅补偿一级色散, 结合棱镜组补偿二级色散利用 BBO 晶体在 660nm 波段获得 100nm 的倍频允许带宽, 效率约 10%, 系统光损耗严重, 结构复杂. 利用这种方案需要研制大口径抗高破坏的色散系统, 在工艺上受到限制. 2) 中国科学院上海光学精密机械研究所钱列加 1995 年提出啁啾匹配型三次谐波转换方案^[2,3], 它利用两束共线入射的线性扫频啁啾脉冲的光学和频变换, 调整其啁啾参数满足一定的匹配关系, 使得所有相应频率成分都能满足波矢匹配或波矢失配量最小, 从而实现高效率三次谐波转换, 这种方法具有与光谱角色散方法相当的补偿功能,

适合线性扫频宽带高功率长脉冲激光, 需要两套激光系统. 3) 另外一种方法是采用多块晶体串接^[8-10], 每块晶体切割角度不同, 对应的相位匹配中心波长不同, 通过光谱“搭接”产生宽带倍频光, 这种方法的优点是技术简单, 缺点是光损耗较大. 4) 采用薄的非线性晶体, 由于晶体长度越小允许相位失配量越大, 薄的晶体可以增大允许波长^[7], 这种技术在超短脉冲倍频中得到广泛应用, 缺点是牺牲了作用区长度, 使转换效率下降, 同时加工大尺寸薄片晶体比较困难. 5) 准相位匹配技术, 这是非线性频率变换技术上的一个突破, 限制该项技术的是目前还不能获得抗高功率激光损伤的大块晶体.

综合上述, 高功率宽带激光的谐波转换(二倍频、三倍频等)目前在国际还没有很好解决, 尤其强激光高效宽带谐波转换面临许多技术和理论问题.

目前的宽带激光谐波转换还基于倍频和三倍频等理论, 实际上激光都有一定谱线宽度, 尤其是宽带激光其谱线宽度较大, 传统谐波转换单纯考虑了相同波长的倍频过程, 没有考虑不同波长之间的和频过程, 传统倍频理论只是窄谱线激光倍频的近似, 而实际激光倍频应该是一个混频过程, 包括倍频和和频, 由于混频效应的存在, 使倍频输出光谱线形并不严格对应基频光谱线形, 光谱线形可以通过设计加以调节. 这一理论的建立, 解释了倍频过程中倍频光谱异常的现象, 同时可望解决宽带激光的倍频难题, 研究同时指出传统允许波长和允许角度在宽频带激

^{*} 国家自然科学基金(批准号 69988003)和激光技术国家重点实验室资助的课题.

光时不适用,基于和频的允许光谱可以扩展到 $1\mu\text{m}$ 以上,宽带激光的允许发散角度可以达到几度。

2 基本理论

2.1 耦合波方程

这里采用单色平面波理论,认为实际激光是由许多单色平面波的傅里叶分量组成,设宽带激光的电场为 E ,这里 E 是由许多单色平面波叠加而成的,为了简化推导,设激光谱线不是连续的,是由许多等间隔线状谱线组成的,每个线状谱线近似为单色平面波。

$$E = \sum_{i=1}^n E_i \cos(\omega_i t + \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_i). \quad (1)$$

这与激光器输出精细谱线情况比较一致,在共线匹配下非线性晶体中能产生的二阶极化波为

$$\begin{aligned} P^{(2)} &= \chi_2 EE = \chi_2 \left[\sum_{i=1}^n E_i \cos(\omega_i t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \right]^2 \\ &= \chi_2 \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n E_i \cos(\omega_i t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) E_j \cos(\omega_j t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \\ &= \frac{\chi_2}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n E_i E_j \cos[(\omega_i + \omega_j) + (\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r}] \\ &+ \frac{\chi_2}{2} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n E_i E_j \cos[(\omega_i - \omega_j) + (\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r}]. \end{aligned} \quad (2)$$

二阶极化波的频率组成由四部分组成,从上式可以看出,当 $i = j$ 时,可以产生频率为 $2\omega_i$ 的倍频波,同时可以产生直流分量;当 $i \neq j$ 时,可以产生频率为 $\omega_i + \omega_j$ 的和频波,同时可以产生频率为 $\omega_i - \omega_j$ 的差频波.上述频率分量表示可能形成的极化波,此极化波能否产生足够强的频率分量,还取决于位相匹配条件能否得到满足,传统对激光的倍频只考虑了频率为 $2\omega_i$ 的倍频波,没有考虑不同频率的和频 $\omega_i + \omega_j$ 的和频波,研究指出,在倍频过程中,某些频率分量同时满足和频相位匹配条件,实际倍频过程存在和频现象,所以实际激光的倍频过程应当是一个混频过程,尤其是宽带激光的谐波转换,用倍频理论处理相差甚远,下面通过非线性晶体中的三波相互作用研究宽带激光能够满足相位匹配情况。

2.2 相位匹配条件

设晶体三波相互作用中的三个光波频率分别为 ω_1 , ω_2 和 ω_3 ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$),其波矢分别为 \mathbf{K}_1 , \mathbf{K}_2

和 \mathbf{K}_3 ,根据动量守恒定理,当非完全相位匹配时,三波共线的相位失配可写为标量形式^[4-7]

$$\begin{aligned} \Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ = k_3(\theta, \varphi, T, \omega_3) - k_2(\theta, \varphi, T, \omega_2) \\ - k_1(\theta, \varphi, T, \omega_1), \end{aligned} \quad (3)$$

θ, φ 为晶体角度, l 为晶体长度, T 为温度,理想相位匹配条件为

$$\Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_1, \omega_2, \omega_3) = 0. \quad (4)$$

传统倍频只考虑了基频波相同波长的谐波效应.光波频率相互作用只考虑 $\omega + \omega = 2\omega$,即上式中 $\omega_1 = \omega_2$, $\omega_3 = \omega_1/2$;对三倍频,对光波频率只考虑 $\omega + 2\omega = 3\omega$,即上式中 $\omega_2 = \omega_1/2$, $\omega_3 = \omega_1/3$,这时完全相位匹配条件实际为

$$\Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_1) = 0. \quad (5)$$

在这个条件中,受变量限制,要想波长变化同时保持相位匹配只有同时改变角度或温度,这就是传统倍频角度匹配和温度匹配的原理,也是角度色散补偿法(ASD)的原理,这是传统谐波转换相位匹配计算的理论基础.在宽带谐波转换中必须考虑不同波长之间的和频效应,不仅考虑相同波长(频率)激光倍频 $\omega + \omega = 2\omega$ 效应,同时考虑不同波长(频率)激光之间的和频效应,即 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$,这里($\omega_1 \neq \omega_2$),这时相位匹配条件可写为

$$\Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_1, \omega_2) = 0, \quad (6)$$

ω_3 受 ω_1, ω_2 决定.这时在一定角度下, ω_1, ω_2 按某种规律同时变化还可以满足相位匹配,合理选择角度不仅可以使某激光波长满足倍频相位匹配,同时满足宽带激光中不同波长之间满足和频相位匹配条件.这里定义这种 ω_1, ω_2 按某种规律同时变化保持相位匹配为补偿条件,如果某宽带激光中的谱线能相互满足补偿条件,就可以实现完全相位匹配,这种补偿条件可以通过非线性晶体的相位匹配条件计算出来。

2.3 相位补偿条件

2.3.1 完全补偿条件

完全补偿条件是给定角度方向,设光波频率按某种规律同时变化保持位相完全匹配,设角度 θ, φ 为对应频率为 ω_0 的倍频匹配角,也是晶体的切割角度,设基波谱线中光波频率 $\omega_1 = \omega_0 + \Delta\omega$, $\omega_2 = \omega_0 + \Delta\omega'$,在这一角度下同时满足相位匹配

$$\Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_0 + \Delta\omega, \omega_0 + \Delta\omega') \equiv 0. \quad (7)$$

宽带激光三波相互作用的共线相位匹配完全补偿条件为

$$\begin{aligned} & \Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_0, \Delta\omega, \Delta\omega') \\ &= \frac{\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega'}{c} n_3(2\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega', \theta, \varphi, T) \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega'}{c} n_2(\omega_0 + \Delta\omega', \theta, \varphi, T) \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega}{c} n_1(\omega_0 + \Delta\omega, \theta, \varphi, T) = 0, \quad (8) \end{aligned}$$

也就是当其中的一个光波频率偏离 ω_0 频率时 $\Delta\omega$, 宽带激光谱线中相对偏离 $\Delta\omega'$ 的光波频率会同时满足和频相位匹配. 从公式可以看出, 当 $\Delta\omega = -\Delta\omega'$ 并不能保证方程恒成立, 所以晶体最佳切割角度不一定在传统认为的宽带激光的中心频率处, 通过计算机数值计算可以求出能满足所有宽带激光所有谱线相位匹配的角度.

2.3.2 允许补偿条件

上面讨论基于完全相位匹配的情况, 即相位失配量为零, 实际上当相位失配量在一定的范围内还可以保持相当的效率, 在考虑允许失配量的情况下, 补偿条件为

$$\begin{aligned} & \Delta k(\theta, \varphi, T, \omega_0, \Delta\omega, \Delta\omega') \\ &= \frac{2\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega'}{c} n_3(2\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega', \theta, \varphi, T) \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega'}{c} n_2(\omega_0 + \Delta\omega', \theta, \varphi, T) \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega}{c} n_1(\omega_0 + \Delta\omega, \theta, \varphi, T) \leq \frac{\pi}{l}. \quad (9) \end{aligned}$$

在允许补偿条件下, 表明当其中一个频率变化时, 同时存在某一范围的光波频率满足允许相位匹配条件. 在实际激光谐波转换过程中, 同时存在倍频和和频混合效应过程, 非线性频率转化过程存在竞争, 内腔倍频激光的“绿光噪声”就属于这种现象, 和频的存在导致谐波输出谱线不是简单的基频频率的加倍, 而含有和频成分, 谐波谱线在不同的情况下将有所不同, 这与单纯利用倍频理论得出的激光谐波转换光谱分布将有所不同.

3 数值计算实例

在宽带混频时, 由于参加混频的光波波长不同, 所以为了达到全部光波都能满足相位匹配, 对 II 类相位匹配, 需要对光波偏振采取一定措施, 而 I 类相位匹配自动满足光波偏振要求. 下面以单轴晶体

BBO 的 I 类相位匹配为例, 数值计算基于上述理论的宽带二次谐波相位匹配情况. BBO 晶体的折射率方程为^[9]

$$\begin{aligned} n_o^2 &= 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2, \\ n_e^2 &= 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516\lambda^2. \end{aligned} \quad (10)$$

这里波长 λ 单位为微米, 由于是单轴晶体, 对角度 φ 不考虑, 同时忽略温度影响, 这时寻常光的折射率为 $n_o(\omega)$, 由上面折射率方程直接求得, 非常光的折射率不仅与光波频率有关, 与入射角度也有关, 其折射率为

$$n_e(\omega, \theta) = \left(\frac{n_o^2(\omega) n_e^2(\omega)}{n_o^2(\omega) \sin^2 \theta + n_e^2(\omega) \cos^2 \theta} \right)^{1/2}. \quad (11)$$

在 I 类相位匹配下, 可以得到求出满足中心频率 ω_0 的相位匹配角 θ_0 . 这时全补偿条件为

$$\begin{aligned} & \Delta k(\theta_0, \omega_0, \Delta\omega, \Delta\omega') \\ &= \frac{2\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega'}{c} n_e(2\omega_0 + \Delta\omega + \Delta\omega', \theta_0) \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega'}{c} n_o(\omega_0 + \Delta\omega') \\ & - \frac{\omega_0 + \Delta\omega}{c} n_o(\omega_0 + \Delta\omega) = 0. \quad (12) \end{aligned}$$

下面分别计算对应不同角度和中心波长下可以满足相位匹配的波长范围, 从图 1 中可以看出, 在考虑和频情况下, 匹配谱线宽度远远大于纯倍频理论下的允许波长, 晶体角度不同, 对应产生谐波中心波长不同, 满足混频条件的光谱范围也不同, 谱线宽度不再仅受基频波决定, 受许多因素决定. 同时不同角

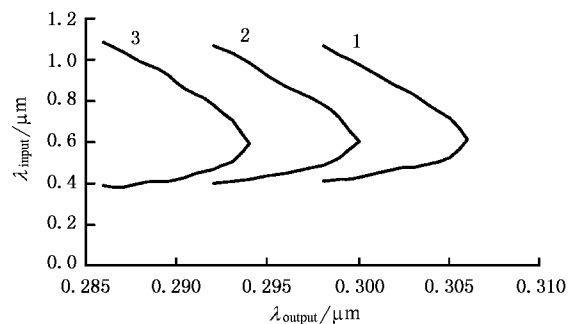


图 1 在给定角度时混频的相位匹配

(曲线 1: $\theta_0 = 39.46^\circ$, $\omega_0 = 0.612 \mu\text{m}$; 曲线 2: $\theta_0 = 40.46^\circ$, $\omega_0 = 0.600 \mu\text{m}$; 曲线 3: $\theta_0 = 41.46^\circ$, $\omega_0 = 0.589 \mu\text{m}$)

度下,产生的谐波不同,在这理论下同时预示了新型可调谐频率转换器件的产生.对于Ⅱ类相位匹配,由于参加和频的光波要求偏振态不同,只有采取调整偏振才可以使所有基频波能满足偏振条件,对Ⅰ类相位匹配则无此问题,可以达到完全相位匹配.

图1中可以看出,宽谱线激光的谐波转化产生光谱线宽受激光发散角影响,大的聚焦发散角使产生谐波的谱线宽度增加,这一现象在超短脉冲激光在厚晶体中倍频的现象中已经被观察到.图中输入光波波长范围达到了800 nm,在本混频理论下达到了100%的相位匹配,产生谐波波长范围只有8 nm,这个光谱宽度与晶体相位匹配方式有关,在计算Ⅱ类相位匹配时发现产生谐波谱线要宽得多.

在传统上由于一般激光器线宽比较窄,倍频效应掩盖了混频效应,当激光谱线远远大于倍频理论激光允许线宽时,这时激光宽带谱线转换中混频效应起主导地位.

在我们的实验中,对KTP晶体Ⅱ类相位匹配,切割 $\theta = 60^\circ$, $\varphi = 0^\circ$,晶体长度8 mm,利用光学参量振荡研究宽带激光的混频效应,因为光学参量振荡过程和基于和频效应的谐波转化过程的相位匹配情况是相同的.当抽运光从700 nm调谐到900 nm,信

号光 $1.3 \mu\text{m}—1.8 \mu\text{m}$,闲频光 $1.8 \mu\text{m}—2.2 \mu\text{m}$ 变化,反过来 $1.3 \mu\text{m}—2.2 \mu\text{m}$ 这么宽谱带的激光在和频效应下可以满足相位匹配,可以产生700 nm—900 nm谱带的宽带激光,而利用倍频理论在这些波段的允许波长只有几个纳米,当然上述实验中还存在光偏振问题,这里不再深入阐述,利用和频产生的宽谱带激光不再是倍频认为的650 nm—1.1 μm 范围,这一理论可以适合宽带三次谐波的产生,我们将另外发表.

4 结 论

通过建立基于混频效应的宽带谐波转换理论,突破了允许波长的限制,指出宽带激光的谐波转换设计不能只利用倍频理论,而应从混频理论出发,通过光谱分布和发散角等综合设计,限制谐波转换最终不再受允许波长的限制而是由于光谱加宽导致分布在单位频率上的光功率密度下降,引起总体谐波转换效率下降,研究的重点应该放在如何提高光功率密度的方面来.同时基于混频理论提出,传统倍频理论的允许波长,允许角等是否只有理论意义,对这一问题的深入研究将另外发表.

- [1] M. D. Skeldon, R. S. Craxton, T. J. Kessler, W. Seka, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **28** (1992), 1389.
- [2] Lie-jia Qian, Bao-qiang Zhu, Dian-yuan Fan, *High Power Laser & Particle Beams*, **7** (1995) 577 (in Chinese).
- [3] Lie-jia Qian et al., *Acta Optica Sinica*, **15** (1995) 662 (in Chinese) [钱列加等, *光学学报*, **15** (1995) 662].
- [4] M. S. Pronko, R. H. Lehberg et al., *IEEE J. Quant Electron*, **26** (2) (1990), 337.
- [5] J. Q. Yao, T. S. Fahlen, *J. Appl. Phys.*, **55** (1) (1984) 65.

- [6] J. Q. Yao, W. D. Sheng, W. Q. Shi, *J. Opt. Soc. Am.*, **B9** (6) (1992) 691.
- [7] J. Q. Yao, *Nonlinear optical frequency conversion and tunable laser technology* (Scientific Press, Beijing, 1995).
- [8] A. Babushkin, R. S. Craxton, S. Oskoui, M. J. Guardalben, R. L. Keck, W. Seka, *Optics Letters*, **23** (12) (1998) 927.
- [9] Margaret Brown, *Optics Letters*, **23** (20) (1998) 1591.
- [10] A. V. Smith, D. J. Armstrong, W. J. Alford, *J. Opt. Soc. Am.*, **B15** (1) (1998) 122.

THEORY OF WIDE BANDWIDTH OPTICAL HARMONIC GENERATION BASED ON FREQUENCY MIXING*

WANG JIE YAO JIAN-QUAN YU YI-ZHONG WANG PENG ZHANG FAN WANG TAO

(*College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering ,Optoelectronic Information Science and Technology Laboratory ,
Tianjin University ,Tianjin 300072 ,China*)

(Received 23 April 2000 ;revised manuscript received 24 September 2000)

ABSTRACT

A new theory of wide bandwidth optical harmonic generation based on frequency mixing is presented. We point out that the wide bandwidth optical harmonic generation is a process of frequency mixing rather than only frequency doubling if there are phase match among different wavelengths. The sum frequency between different wavelengths can play a leading role in wide bandwidth optical harmonic generation ,which can increase the acceptance bandwidth dramatically. This theory is not limited by the acceptance bandwidth of frequency doubling and not only suit for second harmonic generation but also for third harmonic generation.

Keywords : Broad band laser , Harmonic generation , Frequency mixing

PACC : 4279

* Project supported by the National Nature Scientific Foundation of China (Grant No. 69988003) and by the State Key Laboratory of Laser Technology.