

第一章 引言

自从第一台红宝石激光器于 1960 年问世以来, 由于激光本身的特性使得光学这一古老的学科得到了前所未有的发展, 而且与激光相关的一些新领域也相继形成, 各种新型激光器不断涌现, 各种激光技术不断完善。

从激光应用的角度来看, 各种只能在其工作物质的特征频率上工作的激光器往往不能满足一些特殊的需要, 而且越来越多的领域对激光功率提出了更高的要求。高功率全固态光参量振荡器 (OPO) / 光参量放大器 (OPA) 利用非线性晶体的混频特性实现频率变换, 可提供从紫外到红外的宽调谐强激光输出, 具有调谐范围宽、结构简单及工作可靠等特点。随着近年来一些新型而高效的非线性晶体的出现及发展, 全固态 OPO/OPA 以其宽调谐范围、高效率、高重复频率、高分辨率及小型固体化等特点日益引起国际光学界的重视, 已成为一个重要的发展方向。

1.1 光参量振荡器 (OPO) 的发展历程

激光的非线性频率变换, 如: 倍频、和频、差频和光参量等都属于三波相互作用的二阶非线性过程, 因此, 要想通过上述技术获得有效的激光输出, 必须同时具备高质量的非线性光学材料和高功率、高光束质量的激光光源。

1961 年第一台激光器发明不久, P.A. Franken 等人^[1]将红宝石 ($\text{Cr}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$) 晶体所产生的激光束入射到石英晶体 ($\alpha\text{-SiO}_2$) 中, 在实验上首次观察到非线性光学效应——激光倍频。这一现象的实现主要归功于激光的高功率密度, 之后, 和频、差频效应也相继实现^[2-4]。上世纪六十年代初, R.H. Kingston^[5], N.M. Kroll^[6], S.A. Akhmanov^[7]和 J.A. Armsstrong^[8]等人在理论上就预言了三波相互作用中存在参量增益的可能性。光参量三波相互作用的实验直到 1965 年 8 月, C.C. Wang 和 G.W. Racette 等人才首次实现^[9]。他们将红宝石激光器的倍频输出 $3469\text{\AA}$ 作为泵源, 与 He-Ne 激光 $6328\text{\AA}$ 同时注入 ADP 晶体中, 获得增益为 1db 的参量放大输出。同年 11 月, 作为对参量放大的进一步扩展, 美国 Bell 实验室的 J.A. Giordmaine 和 R.C. Miller 实现了光参量振荡。他们采用 $\text{CaWO}_4:\text{Nd}^{3+}$ 激光器的倍

频输出 $5290\text{\AA}$ 作为泵源, 泵浦 5mm 长的 LiNbO_3 晶体^[10], 获得调谐范围为 $700\text{\AA}$ 的参量光输出。1965 年, G.D. Boyd 等^[11]提出了连续波光参量振荡器工作的可能性, 之后 R.G. Smith 等^[12]及 R.L. Byer 等^[13]成功地获得连续波运转的 OPO。1970 年以前, 国际上探索了各种 OPO 的结构, 获得宽的调谐范围, 窄的光谱线宽及均匀调谐, 泵浦源为各种固体激光器及其谐波, 所用的非线性晶体有 KDP, ADP, LiNbO_3 及 $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ (BNN) 等, 调谐方式有温度、角度及电光调谐等。双共振 (DRO) 的 OPO 最大调谐范围为 $0.684\text{--}2.36\ \mu\text{m}$ 。单共振 (SRO) 的 OPO 在效率及光谱特性方面优于 DRO, 但调谐范围窄, 线宽约为 1nm , 而 DRO 可实现单模工作。在阈值及转换效率方面, 采用长度为 0.5 cm 的 BNN 晶体, 阈值低于 3 mW 。脉冲峰值转换效率达 17% , 连续方式效率可达 30% 。这一阶段在理论上建立了完善的参量互作用理论^[14-23]。首台商业化的光参量振荡器是 1970 年采用 45 mm 长的 LiNbO_3 晶体实现的。

在 60 年代这些开创性的工作之后, 从 70 年代中期开始, 由于缺乏高质量的非线性材料, 光学变频技术的发展非常缓慢, 而染料激光器取得了很大的进展, 并且可以在很宽的范围内实现连续调谐。到 80 年代后期, 随着新型优质的非线性光学晶体 BBO^[24], LBO^[25]的发明, 国际上又掀起 OPO 和倍频等其它变频技术的研究热潮。1986 年首次报道了 BBO 参量振荡, 其调谐宽度很快就覆盖了紫外至近红外 ($0.33\text{--}2.4\mu\text{m}$) 波段^[26,27]。紧接着, 1990 年又首次出现了 LBO 纳秒光参量振荡和皮秒光参量放大^[28-30], 显示出该晶体高效地产生宽调谐高功率激光的好前景。目前被广泛应用的晶体仍主要是 KTP^[31-33], BBO^[34-37]和 LBO^[38-42]。随后, 更多非线性晶体研究的重大突破使光参量激光器进入了实用阶段, 涌现出许多透明范围更宽、匹配波长更长的参量振荡晶体, 如 KTA、 MgO:LiNbO_3 、 AgGaSe_2 、 AgGaS_2 、 CdSe 、 ZnGeP_2 、Urea、 CsTiOAsO_4 等。另外, 值得注意的是近几年迅速发展起来的光学超晶格材料技术, 出现了一种全新的准相位匹配 (QPM) 光学参量振荡器。其中 PPLN 是应用最为广泛的晶体之一^[43-48]。到目前为止, 人们采用不同的泵浦波长、不同的非线性晶体及调谐方式, 已实现 $0.4\text{--}20\mu\text{m}$ 的宽调谐输出, 谱线宽度一般达几个波数, 激光脉宽由连续到纳秒、皮秒和飞秒量级, 采用组合调谐方式可进行红外波段的扩展和紫外波段的延伸。

由于输出波长的可调谐特性, OPO 在所有变频技术中具有特殊地位, 其工作特性由泵源、晶体和谐振腔决定。就腔结构而言, 可分为单共振和双共振, 由于单共振结构简单, 运转稳定, 并且容易调谐, 因此, 脉冲激光器通常采用这种方式。连续波 OPO 则通常采用双共振结构, 因为双共振腔的振荡阈值要比单共振腔的低的多, 但它随之带来的问题是稳定性较差, 为保持信号光和闲频光同时共振, 它对腔长、介质温度、泵光波长的微小起伏都非常敏感^[49,50], 必须采用伺服反馈系统^[51], 因而整个装置比较复杂, 但要长期稳定仍很困难, 而且调谐相对复杂^[52]。而单共振的 OPO 就不存在上述不稳定问题, 但其阈值比双共振要高约 100 倍^[53,54], 因此连续波单共振 OPO 一直是宽调谐相干光源的一个奋斗目标^[55]。S.T. Yang 等于 1993 年采用 532 nm 激光泵浦 KTP 晶体, 首次实现了连续波单共振 OPO 输出^[56,57], 泵光单通时的振荡阈值为 4 W, 这一实验结果在连续波单共振 OPO 发展史上是一个非常重要的里程碑。但输出波长只工作在 $1\mu\text{m}$ 附近, 因此是单点输出, 没有调谐。准相位匹配介质发明不久, 单共振的连续波 OPO 就很快在不同的泵浦波段实现^[58-60], 并且可以在很宽的范围内实现调谐输出。

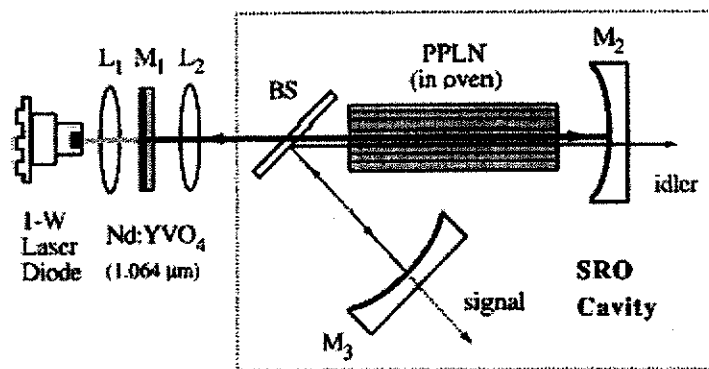


图 1.1 内腔 OPO 示意图

随着激光器性能的逐步完善和新型非线性光学材料的发明, 激光变频技术也逐步提高, 出现了内腔 OPO^[38,61] (如图 1.1 所示), 串接 OPO^[62] (如图 1.2 所示), OPO 腔内和频^[63] (如图 1.3 所示), OPO 腔内倍频技术^[64] (如图 1.4 所示), 逐渐拓宽输出波段, 覆盖了紫外, 可见到红外的整个波段。

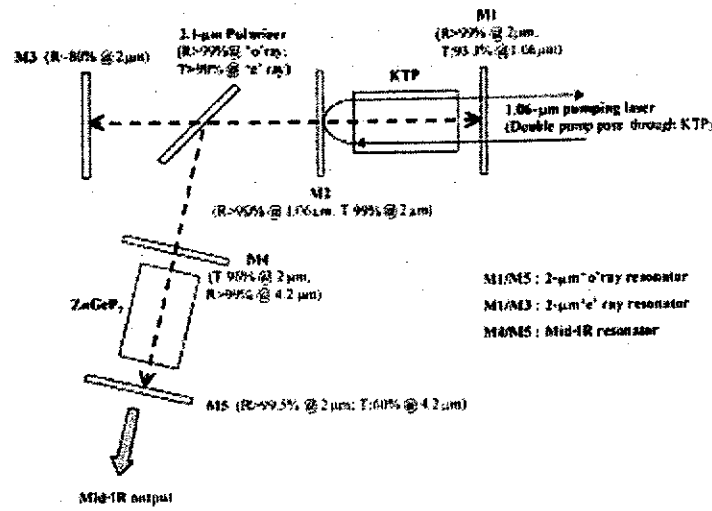


图 1.2 串接 OPO 示意图

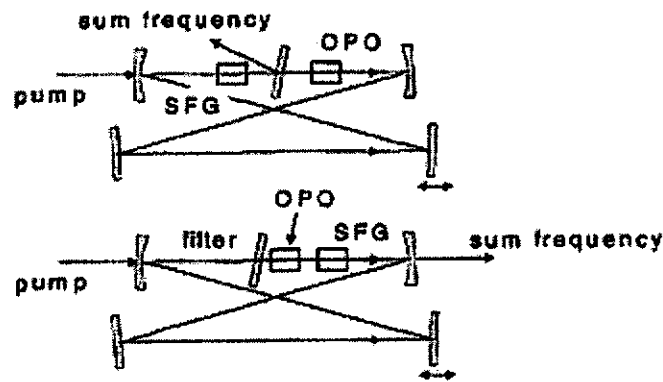


图 1.3 OPO 腔内和频示意图

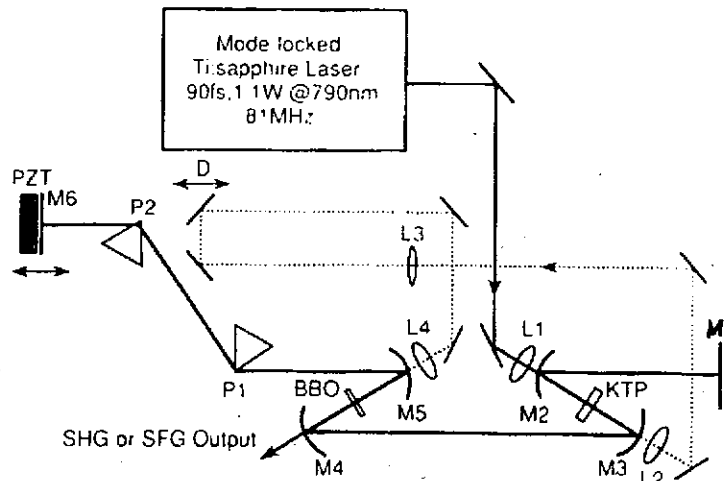


图 1.4 OPO 腔内倍频示意图

高功率紫外波段激光器在防伪印刷、生物、科研和医疗等方面有重要的应用,近年来有了进一步发展。C.K. Lee 等人^[34]通过级联非线性光学混频采用 BBO 晶体利用 fs OPA 以及 SFG 和 SHG, 得到 380-465nm 的紫外蓝光可调谐输出, 能量为 4 μ J。

高功率可见光波段激光器在彩色印刷、激光显示、科研和医疗等方面有重要的应用, 最近也有新的进展。B. Ruffing 等人^[65]在 ps LBO-OPO 中用 355 nm 泵浦获得了 457-479 nm 的可调谐蓝光输出, 功率达 5 W, 总效率为 74%。A. Nebel 等人^[31]利用 fs KTP-OPO 产生的信号光在 LBO 晶体中进行腔外倍频, 得到 520-675 nm 的可调谐输出, 在 575 nm 最高输出功率为 310 mW。

高功率红外波段激光器在激光雷达、红外图像和红外探测器等军事、科研和医疗各方面都有重要的应用, 近年来也有了进一步发展。尤其在大气窗口的各波段有重要应用, 1.4~2.5 μ m 近红外波段, 可用于目标反射光谱; 3~5 μ m 中红外波段, 可用于目标的反射和辐射光谱; 8~14 μ m 远红外波段, 目标的热辐射波段, 利用广泛; 1.5-1.6 μ m 是对人眼安全波段。因而, 对于该波段全固态红外激光的研究成为一个热点。红外波段常用晶体的透明波段分别为: KTP, 350-4500 nm; KTA, 350-4000 nm; PPLN, 330-5500 nm; ZGP, 2-12 μ m; CdSe, 0.75-20 μ m。T. Wang 等人^[66]采用 MgO:LiNbO₃ 在 fs OPA 中获得 1.01-1.08 μ m 可调谐输出, 信号光输出能量为 30 μ J。J. Jiang 等人^[42]采用 fs LBO-OPO 获得了 80 mW 的 1250-1550nm 红外波段可调谐输出。A. Fragemann 等人^[67]用衍射极限光束利用一块 PPKTP 晶体通过两级 ns OPA 在 1.535 μ m 波长处获得 208 KW 的峰功率输出。Y. Zhou, Z.Y. Xu 等人^[68]采用带有掠入射棱镜的复合腔结构所做的 BBO-OPO, 和掠入射棱镜 OPO (窄带腔结构) 相比, 具有相同的线宽, 但具有低阈值和高输出功率的优点, 在 404.6 nm 到 2.5 μ m 之间连续可调谐, 输出能量为 17.3 mJ。B. Kohler 等人^[43]利用一块 55 mm 长 PPLN 晶体以 82 MHz 的重复频率在种子注入 ps OPG 中获得 9.5 W 输出, 调谐范围为 1.57-1.64 μ m。M. Sheik-Bahae 等人^[44]利用 PPLN 晶体在 cw 单共振 OPO 中在 1.7-2.1 μ m 范围获得超过 6 W 的可调谐输出, 并被首次应用于在掺铈固体中观察到激光制冷现象。C.W. Hoyt 等人^[45]利用一块 47 mm 长 PPLN 晶体在 ps OPO 中获得总共 12 W 的参量光输出, 调谐范

围为 1.7-2.84 μm 。K.Finsterbusch 等人^[46]利用 ps PPLN-OPO 获得了 1765-2060 nm 信号光 2.55 W 和 2155-2610 nm 闲频光 2.4 W 输出, 通过在 CdSe 晶体中对信号光和闲频光进行差频, 得到 9.8-19.4 μm 中红外可调谐输出。J.C. Wang 等人^[69]用 KTA 晶体通过 OPA 产生 2.9-4.0 μm 范围的 fs 红外脉冲输出, 脉冲能量为 70 μJ 。由于 ZnGeP₂ (ZGP) 晶体有较大的非线性系数 (约为 KDP 晶体的 160 倍), 有效透光范围约为 2-12 μm , 是很有发展前景的产生红外波段可调谐光源的晶体, K.L. Vodopyanov 等^[70]利用 ZGP-OPO 在 3.8-12.4 μm 之间, 平均输出功率达到 22 W。F. Rotermund 等^[71]采用 LiInS₂ 晶体由 800 nm 激光泵浦 fs OPO 直接得到 4.8-9 μm 波段可调谐输出。

目前光参量振荡器的发展趋势主要是: 高平均功率输出; 改善光束质量; 扩展波段 (尤其是红外和深紫外波段), 改进泵浦源的性能和泵浦方式, 提高参量转换效率; 利用线宽压窄技术压缩线宽; 提高非线性材料的品质因素、损伤阈值, 寻求新型非线性材料; 采用新的泵浦源; 研制四光子参量振荡和 ps 级, fs 级光参量振荡等, 前者属于频率上转换, 扩展紫外波段, 后者属于超短脉冲调谐。光参量振荡器的另一发展趋势是组合调谐, OPO 同倍频、和频、差频甚至受激拉曼散射、染料和固体可调谐激光光源等组合起来, 构成多种方式调谐, 可望在深紫外到远红外范围内得到调谐激光输出。目前光参量振荡器也朝着小型化多功能连续参量光输出的方向发展。全固态 OPO (即由激光二极管泵浦固体激光器, 或再经频率变换后去泵浦 OPO) 稳定性好, 体积小, 已成为一个重要发展方向, 近年来十分活跃。

1.2 全固态纳秒 OPO 的特性及研究现状

在 OPO 众多不同的运转方式中 (连续波、纳秒、皮秒和飞秒 OPO), 纳秒 OPO 的发展最为成熟, 同时也是最为重要的一类 OPO。这是因为激光调 Q 技术的成熟使获得持续时间 10 ns~20 ns、单脉冲能量几百毫焦、峰值功率达到兆瓦量级的泵浦光较为容易, 从而保证了泵光在非线性晶体中的高增益要求。纳秒 OPO 可以得到高平均功率、高转换效率和宽调谐的输出。

纳秒 OPO 具有几个明显的优点, 例如: 纳秒 OPO 对腔型的要求不很严格,

即便采用平—平腔结构, 纳秒 OPO 也可以获得足够大的增益; 其次泵浦光的空间模式不须优化也能保证光参量效应发生; 纳秒 OPO 可以采用单共振与双共振两种工作方式, 故可以视具体应用确定工作方式; 纳秒 OPO 对腔内损耗不敏感, 晶体本身可允许吸收信号光或闲频光; 非线性晶体无需同谐振腔完全准直, 这就可以在一定的匹配角度范围内调节非线性晶体, 获得 OPO 的全范围调谐。

纳秒 OPO 也有一些缺点: (1) 由于泵浦光与非线性晶体的作用时间限制在纳秒量级内, OPO 工作在瞬时状态, 所以纳秒 OPO 没有足够的时间达到静态平衡, 为使 OPO 的转换效率最大, 存在一个最佳泵浦持续时间, 这就对泵浦光提出了较高的要求^[72]; (2) 纳秒 OPO 的泵光脉冲峰值功率很大, 可能会造成腔镜的镀膜和非线性晶体的损坏, 这是限制高平均功率纳秒 OPO 的一个突出问题; 此外, 纳秒 OPO 信号光的输出线宽很大 (通常有几个纳米), 这是在光谱学应用中应该尽力避免的问题。现在如何压窄 OPO 的输出线宽是纳秒 OPO 中的一个很重要的研究课题。在纳秒 OPO 谐振腔中可引入光栅、标准具等光学元件来改善输出信号光的线宽。

利用半导体激光泵浦固体激光技术发展起来的全固态 OPO 具有效率高、寿命长、结构紧凑、体积小、重量轻、可高重复频率工作等优点, 在近几年发展十分迅速。全固态纳秒 OPO 兼备了全固态 OPO 与纳秒 OPO 的优点, 日益引起国际光学界的重视, 已被广泛应用于各科研领域 (如新材料、生物、化学及共振光谱等)。

中国科学院物理研究所的 Z.Y. Xu 等^[73]利用 ns PPLN-OPO 同时观测到从紫外到红外的六个波长输出, 通过改变准相位匹配周期或温度可实现输出调谐。利用周期为 $29.9\text{ }\mu\text{m}$ 的晶体, 测得的六个波长为 448, 515, 532, 630, 773 和 1546 nm ; 通过级联 ns PPLN-OPO^[74]获得了宽调谐输出, 通过改变 PPLN 温度和周期, 调谐范围覆盖 $433\text{--}1657\text{ nm}$ 。X.C. Lin 等人^[75]利用 ns PPLN-OPO 得到可调谐中红外波段参量光。通过在 $28.2\text{--}31\text{ }\mu\text{m}$ 之间改变晶体周期, 可在 $2.77\text{--}4.04\text{ }\mu\text{m}$ 波段实现可调谐输出, 最高输出达 466 mW 。

高功率全固态纳秒 OPO 在军事、材料加工和激光泵浦源等方面有广阔的应

用前景,已成为激光领域一个重要发展方向。近年来,由于高损伤阈值晶体的出现和发展,使得高功率全固态激光器获得重大突破并进入实用化阶段。Y.F. Chen 等^[76]利用非临界相位匹配的 KTP 晶体实现 ns 全固态 OPO 在人眼安全波长 1573 nm 输出平均功率 1.3 W, 峰值功率超过 2kW。美国 Q-peak 公司的 D. Lee 等^[77]采用 524 nm 泵浦非临界相位匹配的三块 LBO 晶体所做的光参量振荡器,获得了 13 W 的 898 nm 信号光输出,对信号光和闲频光分别倍频,得到了 6 W 的 628 nm 红光输出和 3.4 W 的 449 nm 蓝光输出,和剩余的 524 nm 绿光一起作为激光显示的 RGB 光源。M. S. Webb 等人^[78]利用环形腔 ns KTA-OPO 在 1534.7 nm 获得了 33 W 的平均功率输出。W. Zendzian 等人^[32]利用腔内 ns KTP-OPO 在 1572 nm 波长处输出单脉冲能量达 1.9 mJ, 峰功率达 650 K W。Y. Hirano 等^[79]利用掺 MgO 的 PPLN (PPMgLN) 的高抗光折变能力,在 ns PPMgLN OPO 器件中 1.85-2.5 μ m 波段获得了平均功率达 60 W 的参量光输出。

由于全固态纳秒 OPO 在参量振荡中的独特地位,使得它成为当前应用最为广泛的激光调谐光源之一。现在可以利用的非线性晶体很多,使得全固态纳秒 OPO 可以覆盖从可见到远红外的很宽的光谱范围,经倍频、混频等手段后可扩展至紫外乃至深紫外等区域。纳秒 OPO 的缺点是输出光束质量不高和信号光的输出线宽较大,所以,尽可能地改善输出光束质量和输出线宽是当前 OPO 的发展方向之一。

在过去 10 年间,由于泵浦光源、镜面镀膜、非线性晶体质量的改进、新型非线性晶体的研制以及光参量振荡技术等方面的迅猛发展,使得全固态纳秒 OPO 作为一种实用化的宽带可调谐光源成为可能,国际上各大激光公司已陆续推出了许多成型的 OPO 商品,其波长范围从可见到近、中红外连续可调。随着研究的不断深入,全固态纳秒 OPO 的更多特点与用途也将逐渐被发掘出来,其输出光束质量也必将会有更大幅度的提高。

1.3 全固态纳秒 OPO 的泵浦源

全固态 OPO 的发展源于其泵浦源全固态激光器 (DPL),即由半导体激光器 (LD) 泵浦的固体激光器的发展。从 DPL 思想的提出^[80]到实验上实现^[81],经过

不断的发展^[82-98], 输出功率不断提高^[99-106], 推动了倍频、OPO 等非线性频率变换技术的发展。全固态纳秒 OPO 主要有三种泵浦源:

- 一. DPL 直接泵浦 OPO, 其中最典型的是 LD 泵浦 Nd:YAG 或 Nd:YVO₄ 晶体调 Q 产生的 1064 nm 激光直接泵浦 OPO, 可以获得红外波段的可调谐激光, 比较实用的是得到对人眼安全的 1.5 μm 波段参量激光。
- 二. DPL 经非线性频率变换后泵浦 OPO, 其中最典型的是调 Q 的 1064 nm 激光倍频产生的 532 nm 激光及 1064 nm 激光与 532 nm 激光和频产生的 355 nm 激光泵浦 OPO, 可以获得可见和红外波段的可调谐参量激光。
- 三. VCSEL 直接泵浦 OPO。为了获得效率高、体积小、结构紧凑的 OPO 器件, 我们提出了用垂直腔面发射半导体激光器 (VCSEL) 直接泵浦 OPO 的新思路。传统 LD 的光斑不对称, 光束质量很差, 不能直接泵浦非线性频率变换过程, 而 VCSEL 与传统 LD 相比具有圆形对称光斑分布, 发散角小, 可做成扩展腔, 因而有可能用来直接泵浦 OPO。

1.4 本论文的研究内容和意义

高功率全固态 OPO 是近年来的研究热点。采用 532 nm 大功率全固态绿光激光器做泵浦源, 我们研制的 LBO-OPO 激光器 860 nm 的输出功率达到 18 W, 为 ns LBO-OPO 的国际最高水平; 900 nm 输出功率达到 13.5 W, 在腔内泵浦功率为 18 W 时得到 9.4 W, 对应信号光效率为 52%, 为信号光最高转换效率; 通过改变晶体温度得到 778-1036 nm 的可调谐近红外输出, 并采用 BiBO 晶体进行倍频, 得到全波段瓦级可调谐蓝光输出。该红外波段的可调谐激光在光谱学、自由空间通讯、医学和科学研究等方面有广阔的应用, 蓝光可调谐激光可用于科研、生物、医疗、光存储、娱乐、通讯、军事等多领域。

进一步提高 OPO 的输出功率, 除了要得到更高功率的泵浦源和高质量的非线性晶体外, 其中一个重要问题是 OPO 腔镜的损伤问题。目前, 多色的高功率光学膜是一个难题, 对此中科院光电研究所已取得了一些突破性进展, 但对于用于可调谐激光器的宽带高损伤阈值薄膜的镀制仍有待进一步解决提高。

同时, 需要进一步开发和探索新型泵浦源, 我们对于 VCSEL 这种有潜力的泵浦源进行了初步研究。通过进行优化设计, 与长春光机与物理所合作, 我们研制的 980 nm 高功率 VCSEL 器件, 在输出窗口为 500 μm 直径时, 连续波光功率输出均达到 1.95W。经中国科学院成果鉴定, 该指标处于国际领先水平。该高功率 VCSEL 在高功率泵源、空间通信、激光显示、材料加工、医疗及国防等领域均有广泛的应用前景。

本论文第一章对 OPO 的发展历史、现状及应用前景进行了概括总结, 综述了全固态纳秒 OPO 的特点及发展现状; 第二章介绍了三波互作用及光参量振荡器的基本原理和实验设计基础; 第三章从三波互作用的耦合波方程出发, 发展了高功率纳秒 OPO 特性的理论模型, 研究了光束发散性对 OPO 转换效率的影响。第四章在实验上研究了高功率纳秒 LBO-OPO 激光器, 进行了理论计算和最佳化设计, 经过精心实验, 得到了高平均功率、高转换效率和宽调谐 OPO 输出, 研究了 OPO 的光束质量; 第五章针对 OPO 的高效泵浦源即底发射大孔径 VCSEL, 从理论方面研究了有源区量子阱层数、有源区直径、材料热导、串联电阻和电极间距等参数对 VCSEL 器件性能的影响, 优化参数, 进行最佳设计; 最后进行了全文总结。

参考文献

- [1] P.A. Franken et al., *Phys. Rev. Lett.*, 1961(7): 118
- [2] R.C.Miller and A.Savage, *Phys. Rev.*, 1962(128): 2175
- [3] A.W.Smith and N.Braslau, *IBM J. Res. Develop*, 1962(6): 361
- [4] N.I.Adams and P.B. Schoefer, *Proc. IEEE*, 1963(51): 1366
- [5] R.H.Kingston, *Proc. IRA*, 1962(50): 472
- [6] N.M.Kroll, *Phys. Rev.*, 1962(127): 1027
- [7] S.A.Akhmanov et al., *Sov. Phys., JETP*, 1963(16): 252
- [8] J.A.Armstrong et al., *Phys. Rev.*, 1962(127): 1918
- [9] C.C. Wang and G.W.Racette, *Appl. Phys. Lett.*, 1965(6): 169-171
- [10] J.A.Armstrong and R.C.Miller, *Phys. Rev. Lett.*, 1965(14): 973-976

- [11] G.D. Boyd et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1965(8): 313
- [12] R.G. Smith et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1968(12): 308
- [13] R.L. Byer et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1968(12): 109
- [14] R.G. Smith, in *Advances in Laser*, Vol.4, ed. by A.k. Levine et al., NY, Dekker
- [15] C.L. Tang et al., *Laser Focus World*, 1990(9): 87
- [16] R.L. Byer, in *Nonlinear Optics*, ed. by P.G. Harper et al., Academic Press, 1977
- [17] S.J. Brosnan et al., *IEEE J. Quantum Electronics*, 1979(15): 415
- [18] Y.S. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons. Inc., NY, 1984
- [19] E.C. Cheung et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1990(7): 1385
- [20] N.C. Wong, *Opt. Lett.*, 1990(15): 1129
- [21] L.A. Wu et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1987(4): 1465
- [22] J.Q. Yao et al., *J. Appl. Phys.*, 1984(55): 65
- [23] J.Q. Yao et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1992(9): 891
- [24] C.T. Chen et al., *Sci. Sin.*, 1985(B28): 235
- [25] C.T. Chen et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1989(6): 616-621
- [26] Y.P. Wang, Z.Y. Xu, D.Q. Deng et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1991(58): 1463
- [27] J.Y. Huang, J.Y. Zhang, Y.R. Shen et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1990(57): 1963
- [28] Y.P. Wang, Z.Y. Xu, D.Q. Deng et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1991(59): 531
- [29] H. Zhou, J. Zhang, T. Chen et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1993(62): 1457
- [30] F. Hanson and D. Dick, *Opt. Lett.*, 1991(16): 205
- [31] A. Nebel, H. Frost, R. Beigang, R. Wallenstein, *Appl. Phys. B*, 1995 (60): 453
- [32] W. ZENDZIAN, J.K. JABCZYNSKI and J. KWIATKOWSKI, *Appl. Phys. B*, 2003 (76): 355
- [33] C. Fallnich et al., *Appl. Phys. B*, 1995 (60): 427
- [34] Chao-Kuei Lee, Jing-Yuan Zhang, J.Y. Huang and Ci-Ling Pan, *OPTICS EXPRESS*, 2003 (11): 1702
- [35] G. Anstett et al., *Appl. Phys. B*, 2001 (72): 583

- [36] G.Anstett et al., *Appl. Phys. B*, 2003 (76): 541
- [37] 吴穷, 许祖彦等, *中国激光*, 1997(24):138
- [38] S.French et al., *Opt. Lett.*, 1996(21): 976
- [39] J.D. Kafka et al., *Appl. Phys. B*, 1995 (60): 449
- [40] Yu-fei Kong et al., *IEEE J. Quantum Electronics*, 1998(34): 439
- [41] A.Robertson et al., *Opt. Lett.*, 1994(19): 117
- [42] Jie Jiang, Toshifumi Hasama, *Opt. Commun.*, 2002 (211): 295
- [43] B. KOHLER, U. BADER, A. NEBEL, J. -P. MEYN and R. WALLENSTEIN,
Appl. Phys. B, 2002 (75): 31
- [44] Sheik-Bahae M, Hoyt CW, Ebrahimzadeh M, Epstein RI, Edwards BC,
NONLINEAR OPTICS: MATERIALS, FUNDAMENTALS, AND APPLICATIONS,
OSA TRENDS IN OPTICS AND PHOTONICS, 2000 (46):186-188
- [45] C.W. Hoyt, M. Sheik-Bahae and M. Ebrahimzadeh, *Opt. Lett.*, 2002 (27): 1543
- [46] K. Finsterbusch, R. Urschel, and H. Zacharias, *Appl. Phys. B*, 2000 (70): 741
- [47] M.Martinelli et al., *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2001(3):300
- [48] J.Capmany et al., *Appl. Phys. Lett.*, 2001(79): 293
- [49] R.C.Eckardt et al., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1991(8): 646
- [50] A.J.Henderson et al., *Opt. Commun.*, 1995(119): 256-264
- [51] D.Lee and N.C.wong, *J. Opt. Soc. Am. B*, 1993(10): 1659-1667
- [52] F.G.Colville et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1994(64): 1490
- [53] S.E.Harris, *Proc.IEEE*, 1969(57): 2096-2113
- [54] J.E.Bjorkholm and H.G.Danielmeyer, *Appl. Phys. Lett.*, 1969(15): 171-173
- [55] R.L.Byer, *quantum Electronics: A Treatise*, New York: Academic, 1957: 587-702
- [56] S.T.Yang et al., *Opt. Lett.*, 1993(18): 971-973
- [57] S.T.Yang et al., *Opt. Lett.*, 1994(19): 475-477
- [58] L.E.Myers et al., *Electron. Lett.*, 1995(31): 1869
- [59] G.M.Gibson et al., *Opt. Lett.*, 1999(24): 397
- [60] P.E.Powers et al., *Opt. Lett.*, 1998(23): 159

- [61] D.J.M.Stothard et al., *Opt. Lett.*, 1998(23): 1895
- [62] P.B.Phua et al., *Opt. Lett.*, 1998(23): 1262
- [63] E.C.Cheung et al., *Opt. Lett.*, 1994(19): 1967
- [64] A.Shirakawa et al., *Opt. Commun.*, 1996 (123): 121
- [65] B.Ruffing, A.Nebel, R.Wallenstein, *Appl. Phys. B*, 2001 (72): 137
- [66] Tao Wang, Heyuan Zhu, Liejia Qian, Guang Xu, and Dianyuan Fan, *Opt. Commun.*, 2004 (239): 397
- [67] A. Fragemann, V. Pasiskevicius, G. Karlsson and F. Laurell, *OPTICS EXPRESS*, 2003 (11):1297
- [68] Yi Zhou, Zuyan Xu, Daoqun Deng, Yufei Kong, Xiang-An Zhu, and Zhizhong Yan, *J. Opt. Soc. Am. B*, 1997 (14):1496
- [69] Jiun-Cheng Wang and Juen-Kai Wang, *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004 (21): 145
- [70] K.L.Vodopyanov, et al., *Opt. Lett.*, 2000 (25): 841
- [71] F. Rotermund, V. Petrov, and F. Noack, *Appl. Phys. Lett.*, 2001 (78):2623
- [72] Bapna R C et al., *Opt & Laser Technol.*, 1997(29):349
- [73] XU Zu-Yan, LIANG Xiao-Yan, LI Jian, YAO Ai-Yun, LIN Xue-Chun, CUI Da-Fu, WU Ling-An, *CHIN.PHYS.LETT.*, 2002 (19): 801
- [74] LIN Xue-Chun, LI Rui-Ning, YAO Ai-Yun, BI Yong, CUI Da-Fu, and XU Zu-Yan, *CHIN.PHYS.*, 2003 (12): 514
- [75] Lin Xue-Chun, ZHANG Ying, KONG Yu-Peng, ZHANG Jie, Yao Ai-Yun, HOU Wei, Cui Da-Fu, Li Rui-Ning, Xu Zu-Yan, and LI Jian, *CHIN.PHYS.LETT.*, 2004 (21):98
- [76] Y.F. Chen et al., *Appl. Phys. B*, 2003 (76): 263
- [77] Dicky Lee, Peter F. Moulton, Robert Bergstedt, Graham Flint, *Proc. SPIE*, 2001 (4363): 203
- [78] Mark S.Webb and Peter F.Moulton, et al., *Opt. Lett.* 1998 (23): 1161
- [79] Hirano Y, et al., *Photonics Spectra*, 2000 (34):58
- [80] R.J. Newman, *J. Appl. Phys.*, 1963(34):437

- [81] R.J.Keyes et al., *Appl. Phys.*, 1963 (4): 50
- [82] M.Ross, *Proc. IEEE*, 1968(56):196
- [83] K.Washio et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1976(29): 720
- [84] Yung S. Liu et al., *Opt. Lett.*, 1979(4): 372
- [85] A.R.Clobes et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1972(21): 189
- [86] C.B.Hitz et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1971(18): 378
- [87] W.C.Scott et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1971(18): 3
- [88] N.P.Barnes et al., *J. Appl. Phys.*, 1973(44):230
- [89] L.C.Conant et al., *Appl. Opt.*, 1974(13):2457
- [90] L.J.Rosenkrantz, *J. Appl. Phys.*, 1973(43):4603
- [91] R.B.Chesler, *Appl. Phys. Lett.*, 1973(23): 235
- [92] D.A.Dragert, *IEEE J. Quantum Electronics*, 1973(9):1146
- [93] R.B.Chesler, *J. Appl. Phys.*, 1973(44):5443
- [94] F.W.Ostermeyer et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1971(19): 286
- [95] D.L.Sipes et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1985(47): 74
- [96] B.Zhou et al., *Opt. Lett.*, 1985(10): 62
- [97] F.Hanson et al., *Conf. Laser Electro-Opt.*, Opt.Soc, Amer., Washington, DC., 1987
- [98] M.K. Reed et al., *Opt. Lett.*, 1988(13): 204
- [99] J.J.Kasinski et al., *IEEE J. Quantum Electronics*, 1992(28):977
- [100] U.J.Geiner et al., *Appl. Phys. B*, 1994 (158): 393
- [101] R.J.Shine et al., *Opt. Lett.*, 1995(20): 459
- [102] D.Golla et al., *Opt. Lett.*, 1996(21): 210
- [103] Susumu Konno et al., *Appl. Phys. Lett.*, 1997(70): 2650
- [104] Y.Hirano et al., *Opt. Lett.*, 1999(24): 679
- [105] T.Takase, Y.Akiyama et al., *CLEO'2000* CtuE2P198
- [106] C.Brent Dane et al., *CLEO'2002* CPD9-1

第二章 光参量振荡器基本理论

光参量振荡器是利用非线性晶体的混频特性实现光学频率变换的器件, 光参量振荡器 (Optical Parametric Oscillator, OPO) 是指参与非线性频率变换中有一个或二个具有振荡特性, 而光参量放大器 (Optical Parametric Amplifier, OPA) 仅指对信号光进行放大的器件, 前者一般有谐振腔, 而后者没有。光参量振荡器既是非线性光学频率变换的器件, 又是波长可调谐的光源, 具有调谐范围宽、结构简单及工作可靠等特点。随着近年来一些新型而高效非线性晶体的出现及发展, OPO 以其宽调谐范围、高效率、高重复频率、高分辨率及小型固体化等特点日益引起国际光学界的重视。

2.1 三波相互作用的一般理论

当强激光场 $\vec{E}$ 与电介质相互作用时, 电介质内部电荷因受电场感应产生电极化效应。介质的电极化强度 $\vec{P}$ 可以写成它的电场强度 $\vec{E}$ 的高次函数^[1]

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} : \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots \quad (2.1)$$

式中的第一项是电极化的线性项, 从第二项开始都是非线性极化项。其中 $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$ 分别称为线性 (一阶)、二阶、三阶电极化率, 它们分别为二阶、三阶、四阶极化张量。

本章研究内容仅局限于非线性光学晶体的二阶非线性光学效应。一般来说, 二阶非线性光学效应 ($\chi^{(2)} \neq 0$) 只发生在缺乏反演对称性的介质中。而在具备反演对称性的介质中 (如气态介质) 都不易发生二阶非线性光学效应 ($\chi^{(2)} = 0$), 这是因为这类介质在电偶极矩作用下的最低阶非线性是三阶非线性效应。三阶非线性效应存在于所有的晶体和各向同性介质中。三阶非线性效应比二阶非线性效应小, 本文只讨论具有二阶非线性效应的晶体中的三波相互作用。

当两个频率为 ω_1 、 ω_2 的单色光波在具有二阶非线性光学效应的晶体中传播时, 由于非线性光学耦合作用会产生新的光波, 频率为 $\omega = \omega_1 \pm \omega_2$ 。取 “+” 时, 是和频过程 (SFG); 取 “-” 时, 为差频过程 (DFG); 当 $\omega_1 = \omega_2$ 时, 和频过程

过渡为倍频过程 (SHG)，因此可以说，倍频效应是和频过程的特例；光参量振荡 (OPO) 是与和频相反的过程，在谐振腔反馈作用下，一个频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 的光波产生两个频率为 ω_1 、 ω_2 光波。

上述非线性过程可以通过麦克斯韦方程组，在理想的单色均匀平面波和慢变幅近似下，推导出的耦合波方程来描述^[2]，即三波耦合方程

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_1}{\partial z} + \alpha_1 E_1 &= i \frac{\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} E_2^* E_3 e^{i\Delta k \cdot z} \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} + \alpha_2 E_2 &= i \frac{\omega_2 d_{\text{eff}}}{n_2 c} E_1^* E_3 e^{i\Delta k \cdot z} \\ \frac{\partial E_3}{\partial z} + \alpha_3 E_3 &= i \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} E_1 E_2 e^{-i\Delta k \cdot z}\end{aligned}\quad (2.2)$$

式中 E_i 和 ω_i ($i=1, 2, 3$) 分别是光波的振幅和圆频率， α_i 是损耗系数， n_i 是介质折射率， Δk 为波矢失配量， d_{eff} 是有效非线性系数，定义为 $\chi^{(2)} = 2d_{\text{eff}}$ 。

三波耦合方程的物理意义是：由于二阶非线性极化，三个平面波相互作用，相互耦合，并通过这种相互作用进行彼此之间的能量转移。有效非线性系数的大小则标志着这种转移的快慢。方程 (2.2) 是分析二阶非线性光学现象（如倍频、和频、参量效应等）的基本方程。

为有效地进行非线性光学频率变换，必须使参与互作用的光波在介质中传播时具有相同的相速度。实现有效频率变换的方法之一是相位匹配技术，利用非线性晶体的双折射与色散特性达到相位匹配。

设参与互作用的三个光波的圆频率分别为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$)，其波矢分别为 $\bar{K}_1$ 、 $\bar{K}_2$ 及 $\bar{K}_3$ ，根据动量守恒定理，完全相位匹配时，有

$$\Delta k = \bar{K}_1(\omega_1) + \bar{K}_2(\omega_2) - \bar{K}_3(\omega_3) = 0 \quad (2.3)$$

$$\text{即} \quad \bar{K}_1(\omega_1) + \bar{K}_2(\omega_2) = \bar{K}_3(\omega_3) \quad (2.4)$$

$$\text{由于} \quad \vec{K}_i = \frac{\omega_i}{c} n_i \vec{i} \quad (i=1,2,3) \quad (2.5)$$

式中 i 是波矢 $\vec{K}_i$ 的单位矢量, n_i 是频率为 ω_i 的光波在介质中的折射率。将式 (2.5) 代入式 (2.4), 则有

$$\Delta \vec{k} = \frac{\omega_1}{c} n_1 \vec{i}_1 + \frac{\omega_2}{c} n_2 \vec{i}_2 - \frac{\omega_3}{c} n_3 \vec{i}_3 = 0 \quad (2.6)$$

如果参与互作用的三个光波的波矢方向相同 (共线), 即

$$\vec{i}_1 = \vec{i}_2 = \vec{i}_3$$

则有

$$\Delta k = \frac{\omega_1}{c} n_1 + \frac{\omega_2}{c} n_2 - \frac{\omega_3}{c} n_3 = 0 \quad (2.7)$$

$$\text{即} \quad \omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 = \omega_3 n_3 \quad (2.8)$$

式 (2.8) 即为共线条件下, 三波互作用的相位匹配条件。

从原理上说, 非线性晶体中三波互作用的相位匹配有两种类型。设互作用的三个光波满足 $\omega_3 > \omega_2 \geq \omega_1$, $\frac{dn}{d\lambda} \leq 0$, 如果频率为 ω_1 的光波与频率为 ω_2 的光波具有相同的偏振, 此时的相位匹配为 I 类相位匹配; 反之, 光波 ω_1 与光波 ω_2 具有正交的偏振, 此时的相位匹配为 II 类相位匹配。

单轴晶体中, 根据电位移矢量 $\vec{D}$ 的方向不同, 光波分为 o 光及 e 光。在两种相位匹配情况下, 参与互作用的光波是 e 光还是 o 光, 由晶体的类型所决定。

表 2.1 单轴晶体相位匹配表

	正单轴晶体	负单轴晶体
I 类匹配	$\omega_1 \rightarrow e\text{光}, \omega_2 \rightarrow e\text{光}; \omega_3 \rightarrow o\text{光}$	$\omega_1 \rightarrow o\text{光}, \omega_2 \rightarrow o\text{光}; \omega_3 \rightarrow e\text{光}$
	$n_3^o = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^e + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^e$	$n_3^e = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^o + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^o$

II类匹配	A	$\omega_1 \rightarrow o\text{光}, \omega_2 \rightarrow e\text{光}; \omega_3 \rightarrow o\text{光}$	$\omega_1 \rightarrow e\text{光}, \omega_2 \rightarrow o\text{光}; \omega_3 \rightarrow e\text{光}$
		$n_3^o = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^o + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^e$	$n_3^e = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^e + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^o$
	B	$\omega_1 \rightarrow e\text{光}, \omega_2 \rightarrow o\text{光}; \omega_3 \rightarrow o\text{光}$	$\omega_1 \rightarrow o\text{光}, \omega_2 \rightarrow e\text{光}; \omega_3 \rightarrow e\text{光}$
		$n_3^o = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^e + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^o$	$n_3^e = \frac{\omega_1}{\omega_3} n_1^o + \frac{\omega_2}{\omega_3} n_2^e$

表 2.1 列出了单轴晶体中 I、II 类相位匹配条件。如果已知单轴晶体的色散方程,可很方便地求出单轴晶体中满足 I 或 II 类相位匹配的光波的波矢传播方向 θ —匹配角。

单轴晶体由于其光学主轴为 z 轴,具有回转对称性,所以在单轴晶体中三波互作用的相位匹配问题容易解决。双轴晶体的折射率曲面在直角坐标系中是四次曲面(双层壳面),缺乏对称性,其相位匹配曲线不能简单地解析求解。双轴晶体中相位匹配方向由光波在晶体中的传输方向 (θ, φ) 决定, θ 为 $\vec{K}$ 与 z 轴的夹角, φ 为 $\vec{K}$ 在 xoy 面上的投影与 x 轴的夹角。

光波在双轴晶体中的传播,其电场矢量 $\vec{E}$ 有两个可能的振动面,分别对应慢光和快光,对应的折射率为 $n'(\omega_i)$ 和 $n''(\omega_i)$, 约定 $n'(\omega_i) > n''(\omega_i)$ 。在双轴晶体的光学主轴坐标系中,由于假定了 $n_z > n_y > n_x$, 这就确定了双轴晶体的折射率椭球的形状是沿 z 轴拉长(与 x, y 轴比较)及沿 y 轴拉长(与 x 轴比较)的;晶体的主轴折射率随光波波长改变而改变,且如果 $\omega_i > \omega_j$, 则 $n_x(\omega_i) > n_x(\omega_j)$, $n_y(\omega_i) > n_y(\omega_j)$ 及 $n_z(\omega_i) > n_z(\omega_j)$ 。如入射基波光均为慢光,偏振方向平行,称为 I 类相位匹配;如入射的基波光既有慢光又有快光,偏振方向正交,则称为 II 类相位匹配。由于双轴晶体的快光及慢光的折射率,分别为折射率面的内层壳面及外层壳面,所以 I 类相位匹配是由基波的慢光和谐波的快光折射率的空间交线,即由基波外壳面与谐波的内壳面交线来决定的。II 类相位匹配是由基波折射

率面内、外二层壳面的平均壳面与谐波内壳表面的空间交线决定的。其相位匹配条件用电场可表示为

$$\text{I 类 } \bar{E}(\omega_1, n_1') + \bar{E}(\omega_2, n_2') \rightarrow \bar{E}(\omega_3, n_3'')$$

$$\text{II 类 } \bar{E}(\omega_1, n_1') + \bar{E}(\omega_2, n_2'') \rightarrow \bar{E}(\omega_3, n_3'')$$

有的文献将双轴晶体第 II 类相位匹配三波相互作用又分为 A, B 两类, 即: ω_1 为快光, ω_2 为慢光; ω_1 为慢光, ω_2 为快光。如果不限制 ω_1, ω_2 的大小, 可统一用一个公式表示。对于共线三波相互作用, 可直接表示为

$$\text{I 类 } \omega_1 n_1'(\omega_1) + \omega_2 n_1'(\omega_2) = \omega_3 n_1''(\omega_3)$$

$$\text{II 类 } \omega_1 n_1'(\omega_1) + \omega_2 n_1''(\omega_2) = \omega_3 n_1''(\omega_3)$$

单轴晶体中, 光波沿某个特定方向 θ_m 入射; 双轴晶体中光波沿特定方向 (θ_m, φ_m) 入射, 满足 $\Delta k = 0$, 即实现完全相位匹配。但在实际中, 由于光波的发散角等多种因素, 很难做到完全相位匹配, 总存在或大或小的相位失配 Δk , 从而降低了频率变换的效率。通常规定一个确定的相位失配 $\Delta k = \frac{\pm \pi}{l}$, 这里 l 为晶体长度, 即在 $\Delta k = 0$ 的两侧各有 π/l 大小的允许失配量。在小信号近似下, 非线性晶体中三波相互作用的效率为

$$\eta \propto \sin^2\left(\frac{l}{2}\Delta k\right) \quad (2.9)$$

所以在最大允许失配处, 效率下降至最大值的 $4/\pi^2$, 大约 40% 左右。这样, 可以由最大允许失配量 Δk 来求得相位匹配的允许角 $\Delta\theta$ (或 $\Delta\theta \cdot l$)、 $\Delta\varphi$ (或 $\Delta\varphi \cdot l$)、允许波长 $\Delta\lambda$ 或 $(\Delta\lambda \cdot l)$ 和允许温度 ΔT ($\Delta T \cdot l$)。

在非线性晶体中, 由于光波的双折射作用, 一般来说, 光波的相位传播方向, 即波矢方向 $\vec{k}$ 和能流传播方向, 即能流密度矢量 $\vec{S}$ ($\vec{E} \times \vec{H}$, 即坡印亭矢量) 是

不一致的。波矢 $\vec{K}$ 与能流密度矢量 $\vec{S}$ 之间的夹角 α 称为光波的走离角。

晶体中允许的某一偏振光波的的电场矢量 $\vec{E}$ 、电位移矢量 $\vec{D}$ 、波矢 $\vec{K}$ 及能流密度矢量 $\vec{S}$ 均处在同一平面内，且有 $\vec{D} \perp \vec{K}$ ， $\vec{E} \perp \vec{S}$ ，所以光波的走离角 α 也是光波的电场矢量 $\vec{E}$ 与其电位移矢量 $\vec{D}$ 之间的夹角。

单轴晶体中对应于某一波矢方向 $\vec{K}$ 有两条光线—— o 光及 e 光，两者的 $\vec{E}$ 矢量互相垂直， $\vec{D}$ 矢量也彼此垂直。对于 o 光而言，它的 $\vec{E}$ 矢量及 $\vec{D}$ 矢量始终平行，并垂直于波矢与光轴所确定的平面，光线方向 $\vec{S}$ 与波矢方向 $\vec{K}$ 重合。对于 e 光，它的 $\vec{E}$ 矢量和 $\vec{D}$ 矢量一般不平行，不过都处在波矢与光轴所确定的平面内，它的光线方向 $\vec{S}$ 与 $\vec{K}$ 方向不重合， $\vec{S}$ 与 $\vec{K}$ 之间的夹角为走离角，它的大小随 $\vec{K}$ 矢量方向而异，所以在单轴晶体中 o 光的走离角为零， e 光的走离角为

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{1}{2} \frac{(n_e^2 - n_o^2)}{n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta} \cdot \sin 2\theta \quad (2.10)$$

对于双轴晶体，晶体中光波有两个允许的偏振方向，即相应的折射率大的慢光 e_1 方向和相应的折射率小的快光 e_2 方向，因此走离现象发生于两个平面上，对应的走离角大小也不同。光波的走离使晶体中相互作用的光波经过一段距离后互相分开，从而减小了相互作用长度。

单轴晶体中，如果相位匹配角 θ_m 等于 90° ，则称为 90° 相位匹配或非临界相位匹配。当 $\theta = 90^\circ$ 时，光波的波矢 $\vec{K}$ 与光线方向 $\vec{S}$ 完全重合，都垂直于光轴方向，光波的 $\vec{E}$ 矢量和 $\vec{D}$ 矢量方向相同，光波的走离角为零。对于双轴晶体，非临界相位匹配时相位匹配方向在晶体主轴上。一般在非临界相位匹配下，相位匹配的允许角很大，约为几十毫弧度。实际中，通常采用改变晶体的工作温度来改变光波的主折射率，以达到非临界相位匹配。

2.2 光参量振荡器一般理论

在非线性介质的差频过程中,湮灭一个高频光子,可同时产生两个低频光子,这两个低频光波获得增益。若将一个强的高频光波(泵浦波)和一个弱的低频光波(信号波)同时入射到非线性晶体,则可产生差频光波(闲频波),同时弱的信号波被放大。三波多次通过非线性晶体则信号波和闲频波得到多次放大。若将非线性晶体置于谐振腔内用强的泵浦光照射,当增益超过损耗,在腔内可以从噪声中建立起相当可观的信号波及闲频波,即为光参量振荡器。

就腔结构而言,光参量振荡器可分为单共振和双共振两种。双共振的谐振腔的反射镜强烈反射频率为 ω_1 和 ω_2 的波,而单共振的谐振腔的反射镜只强烈反射频率为 ω_1 或 ω_2 的波。双共振谐振腔的泵浦阈值低,连续波激光泵浦亦可达到,但是它的稳定性差。采用单共振的谐振腔可消除这种不稳定性,但是它的泵浦阈值高,单共振振荡器的泵浦阈值约是双共振振荡器的100倍。因此,单共振参量振荡器通常要用脉冲激光作泵浦源。

光参量振荡器的参量增益大小与泵浦光强成正比,即

$$G_0 \approx |E_3|^2 \quad (2.11)$$

当增益大于损耗时,可产生参量振荡,此时的参量增益即为光参量振荡器的阈值。增大泵浦脉冲宽度 Δt ,减小相位失配因子 Δk ,增大振荡光的反射率 R ,减小腔长 L ,有利于降低光参量振荡器的泵浦阈值。

对于双共振光参量振荡器(DRO),其总功率转换效率可表示为

$$\eta = 2 \left[\frac{1}{\sqrt{N}} \sin \left(-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\phi_+ \right) - \frac{1}{N} \right] \quad (2.12)$$

这里

$$N = \left| \frac{E_3(0)}{E_3(0)_{th}} \right|^2 = N(\Delta k) \quad (2.13)$$

是入射泵浦场强度超过阈值的倍数, l 是 OPO 的有效腔长, $\Delta\varphi_{\pm} = \varphi_{3\pm} - \varphi_{1\pm} - \varphi_{2\pm}$ 是三个波的相对相位, 式中“+”及“-”分别表示前行及后行两个方向。若只考虑 $0 < -\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+} \leq \frac{\pi}{2}$ 象限的情况, 要产生有效的三波互作用的能量转移, 即 $\eta > 0$, 泵浦强度必须达到

$$N > \frac{1}{\sin\left(-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+}\right)} \quad (2.14)$$

时, 才能产生参量光的输出。若 $-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+} = \frac{\pi}{2}$, 转换效率为

$$\eta = 2\left(\frac{1}{\sqrt{N}} - \frac{1}{N}\right) \quad (2.15)$$

在 $N = 4$ 时达到最大转换效率 $\eta = 50\%$ 。图 2.1 给出 $-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+} = \frac{\pi}{10}, \frac{\pi}{5}, \frac{2\pi}{5}, \frac{3\pi}{10}, \frac{\pi}{2}$ 五种不同的相对相位与相位失谐时光参量振荡器的转换效率曲线^[3]。

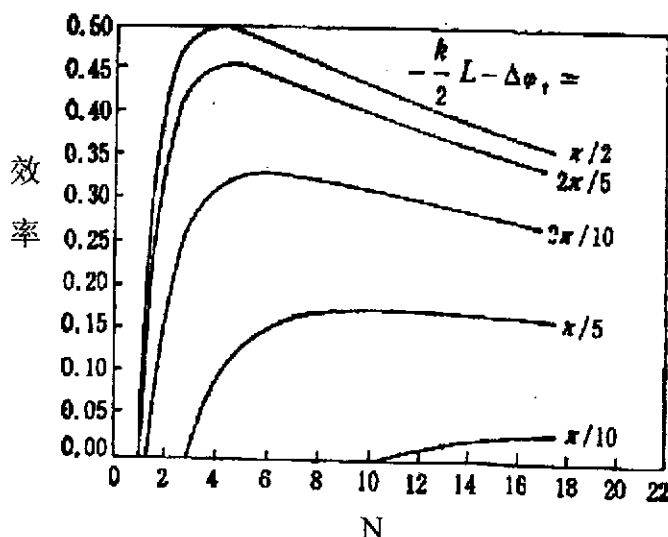


图 2.1 相位失配和相对相位对 DRO 转换效率的影响

从图中曲线可看出: 当 $-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+} = \frac{\pi}{2}$ 时, 效率曲线的最大值达 50%, 此时 $N = 4$ 。随着 $-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_{+}$ 的减小, 效率曲线的最大值降低, 产生参量光的泵浦倍数

需增大, 当 $-\frac{l\Delta k}{2} - \Delta\varphi_+ = \frac{\pi}{10}$ 时, $N \sim 11$ 时才产生参量光, 阈值增高, 当 $N \sim 20$ 时才达到效率曲线的最大值。

对于单共振光参量振荡器 (SRO), 其转换效率可表示为

$$\eta = \sin^2\left(\frac{l\Delta k}{2}\right)\left(1 - \frac{1}{N}\right) \quad (2.16)$$

当 $\frac{l\Delta k}{2} = \frac{\pi}{2}$, 并且 $N \rightarrow \infty$ 时, SRO 的转换效率可达到 100%, 这当然是一种理想的情况。如果泵浦功率超过阈值, $N > 1$, 则信号功率开始增长。图 2.2 给出了当 $\frac{l\Delta k}{2}$

$= \frac{3\pi}{10}, \frac{2\pi}{5}, \frac{\pi}{2}, \frac{13\pi}{20}, \frac{3\pi}{4}$ 各值时的 SRO 效率曲线。当 $\frac{l\Delta k}{2}$ 远离 $\frac{\pi}{2}$ 时, 随着

泵浦功率的增加, 当 $N \sim 5$ 时, η 的增长速度减慢, 曲线趋于平滑, 渐近于

$\sin^2\left(\frac{l\Delta k}{2}\right)$ 值; 而 $\frac{l\Delta k}{2}$ 靠近 $\frac{\pi}{2}$ 时, N 要提高到 10 倍以上, 效率曲线才趋于平滑,

渐近于 $\sin^2\left(\frac{l\Delta k}{2}\right)$ 值。这一渐近效率值是一种理想值 ($N \rightarrow \infty$)。

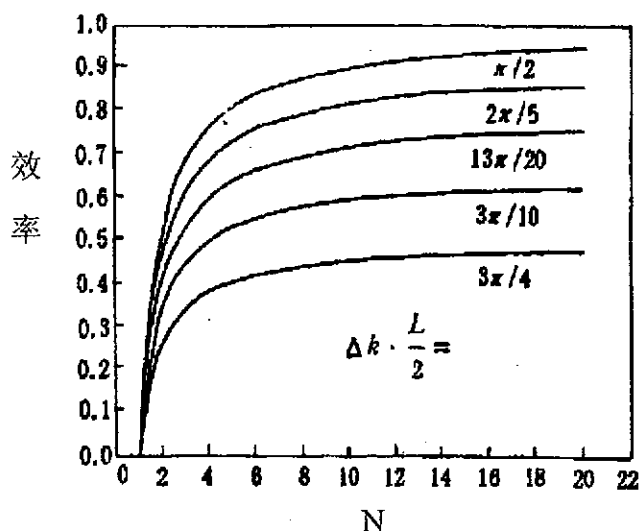


图 2.2 相位失配对 SRO 转换效率的影响

在可调谐激光的应用中, 其单色性方面的要求是非常关键的。其它激光光源在带宽变窄时, 会出现功率损耗, 但光学参量振荡器则不然, 即使在单模工作情

况下, 它仍然保持完全的效率。光参量振荡器的输出线宽与非线性光学晶体、泵浦源、具体结构等因素有关。

泵浦光源是多模的, 将造成多波长泵浦, 此时假设泵浦光本身的谱线宽度为 $\delta\lambda_3$, 则造成的参量光的谱线宽度由下式决定:

$$\delta\lambda_1 = \frac{(n_{3eff} - n_{2eff})}{(n_{1eff} - n_{2eff})} \frac{\lambda_1^2}{\lambda_3^2} \delta\lambda_3 \quad (2.17)$$

$$\text{式中} \quad n_{ieff} = n_i + \frac{\partial n_i}{\partial \omega_i} \omega_i \quad i=1,2,3 \quad (2.18)$$

$\frac{\partial n_i}{\partial \omega_i}$ 是非线性晶体的光学色散。

泵浦光束的发散度影响参量光线宽, 在非线性晶体内不同方向的泵浦光在满足相位匹配条件下对应不同波长的信号光与闲频光。如发散角为 φ , 则引起的线宽为

$$\delta\lambda = \frac{d\lambda}{d\theta} \times \frac{\varphi}{n_p} \quad (2.19)$$

式中 n_p 是泵浦频率处晶体的折射率, $\frac{d\lambda}{d\theta}$ 为角度调谐曲线的斜率, 并有

$$\frac{d\lambda}{d\theta} = \frac{n_3^2 \lambda_s^2}{2(n_{1eff} - n_{2eff})} \sin 2\theta \quad (2.20)$$

由相位失配 Δk 引起的线宽为

$$\delta\lambda = 2 \left| \frac{d\lambda}{dk} \right| |\Delta k| \quad (2.21)$$

这里

$$\frac{d\lambda}{dk} = \frac{\lambda^2}{2\pi(n_{1eff} - n_{2eff})} \quad (2.22)$$

如果用晶体在某一温度下沿通光方向或横向空间的控温涨落 δT 来描述晶体

的控温灵敏度, 则 δT 越小, 温度控制越精确。但实际上控温仪总有一定的控制涨落以及热惯性导致的传导温度起伏, 这将导致参量光的综合谱线宽度加宽。如晶体温度有一小的空间起伏 δT , 则导致的线宽为

$$\delta\lambda = \left| \frac{d\lambda}{dT} \right| \delta T \quad (2.23)$$

由于在简并点附近 $\left| \frac{d\lambda}{dT} \right|$ 的值很大, 所以由晶体温控灵敏度 δT 引起的参量光线宽将是非常大的。这样, 精确控制晶体的运转温度尽量减小空间温控涨落对减小参量光的线宽是很有作用的。

综上所述, 如下措施有利于得到窄的线宽: 采用窄线宽的泵浦源; 采用发散角小的泵浦源; 尽量减小相位失配; 尽量减小温控灵敏度。此外, 采用在腔内放置压窄线宽的元件^[4], 如棱镜、光栅及标准具等, 或主振及功率振荡的 OPO 结构 (即种子注入法) 等方法亦有利于减小光参量激光的输出线宽。

参量振荡器的输出频率由能量和动量守恒

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$$

和

$$k_3 = k_1 + k_2$$

确定, 它们一起给出关系式

$$\omega_3 [n_3(\omega_3) - n_2(\omega_3 - \omega_1)] = \omega_1 [n_1(\omega_1) + n_2(\omega_3 - \omega_1)] \quad (2.24)$$

如果能用外部参数来改变 $n(\omega)$, 就可使振荡器的输出频率调谐。常用的调谐方式有双折射调谐 (包括角度调谐和温度调谐)、泵光调谐和准相位匹配的周期调谐。图 2.3 中 (a)、(b)、(c)、(d) 分别给出四种调谐的曲线。

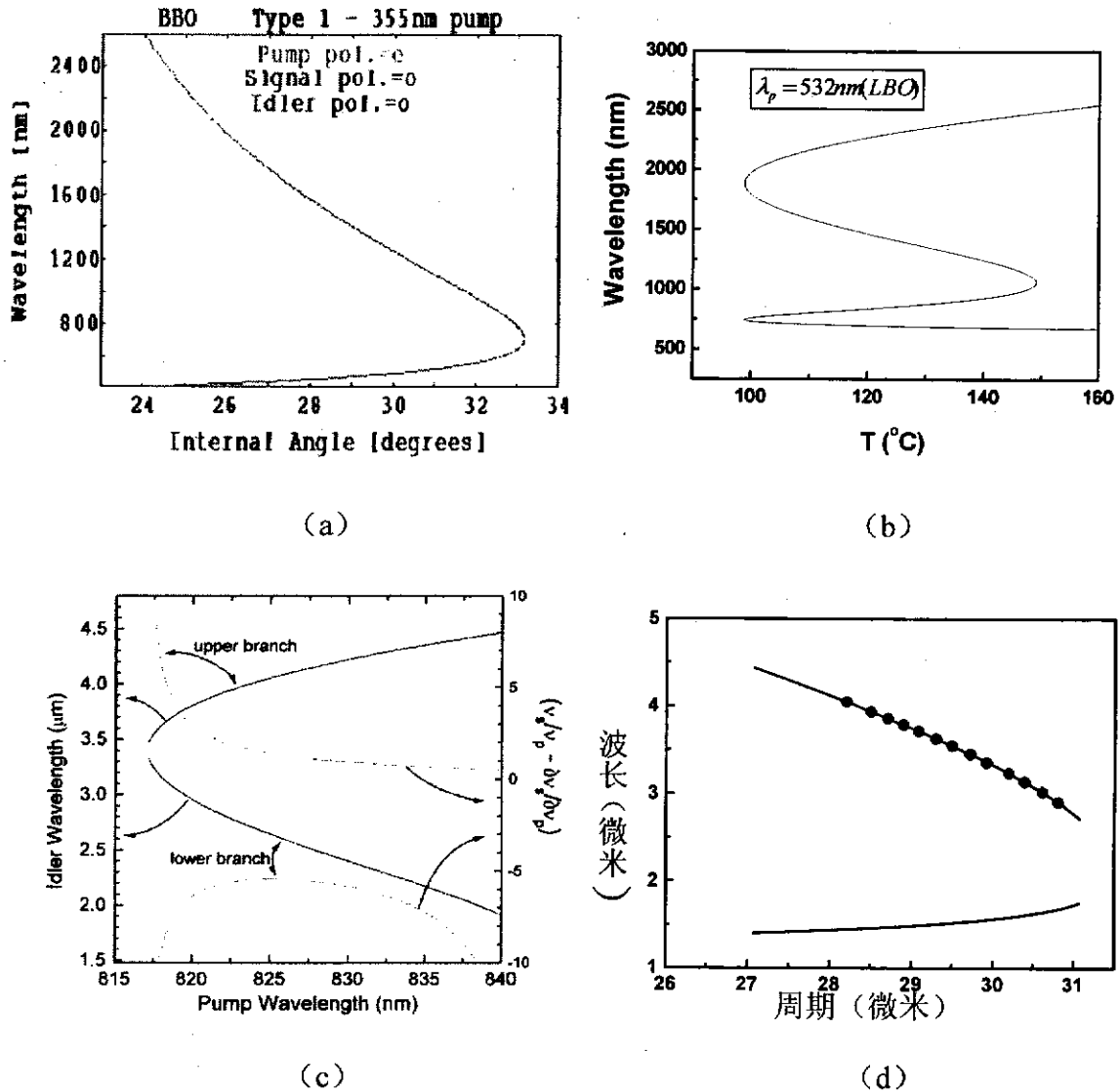


图 2.3 调谐曲线 (a) BBO 角度调谐, (b) LBO 温度调谐,

(c) PPLN 波长调谐, (d) PPLN 周期调谐

光参量振荡器的谐振腔构型直接决定了腔模的分布。两类腔模中, 各纵模之间的差别在于它们的振荡频率; 各横模间不仅振荡频率不同, 在垂直于传播方向的平面内的场分布也不相同。在激光器光谱调谐方面, 纵模影响激光线宽和相干长度, 横模决定光束发散角、光斑直径和横向能量分布。不同的腔型产生不同的衍射损耗, 对光参量振荡器的低增益运转影响较大。从衍射损耗的分析可知: 衍射损耗同腔结构有关, 稳定腔 (如共焦腔等) 损耗小, 非稳定腔 (如平行平面腔等) 损耗大; 衍射损耗同菲涅耳数 N 有关, N 越大衍射损耗越小; 衍射损耗同

横模阶次有关, 阶次低损耗小。光参量振荡器的菲涅耳数 $N = \frac{\alpha^2 n}{\lambda L}$ 应尽量大些,

谐振腔镜间距 L 就要尽量小。由于谐振腔横向尺寸 α 受到非线性晶体横向尺寸的限制, n 和 λ 受到材料和泵浦源的影响, 所以缩短 L 是可行的。其次, 共焦腔衍射损耗小, 光束腰直径比较大, 有利于参与互作用的相位匹配, 是较理想的光参量谐振腔型。但从相位匹配和参量线宽考虑, 平行平面腔也是可供选择的一种腔型, 因为它的光束腰直径最大, 尽管由于衍射损耗而使它的泵浦阈值有些升高。在脉冲泵浦的光参量振荡器情形泵浦阈值一般不会成为难题, 但对连续波工作的光参量振荡器要降低泵浦功率阈值, 就要精心设计腔的结构。

一般情况下, 谐振腔的球面镜是在折射率为 n 的平凹镜片上镀膜制成, 因此这种谐振腔的输出镜的作用就像是一个负透镜, 改变了输出光束的特性。考虑这种负透镜效应后, 由曲率半径为 R 的两球面镜构成的谐振腔, 其输出光束束腰为

$$\omega_0' = \omega_0 \left[1 + \frac{L(n^2 - 1)}{2R} \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (2.25)$$

这里 ω_0 就是等曲率半径谐振腔的束腰值, 有

$$\omega_0^2 = \frac{\lambda}{2\pi} [L(2R - L)]^{\frac{1}{2}} \quad (2.26)$$

可以看出, 光束从输出镜输出后束腰减小, 这就表明谐振腔产生的参量光输出后其发散角增大, 这对参量光的应用是有害处的。采用共焦腔型就存在这一问题, 但如果 $R \rightarrow \infty$ 变成平行平面腔, 则 $\omega' = \omega_0$, 参量光的束腰半径不发生变化, 发散角仍保持腔内时的大小。

本章小结:

本章讨论了三波互作用的基本原理, 分析了影响非线性频率变换的几个物理因素, 并具体讨论了光参量振荡器的阈值特性、转换效率、谱线宽度、调谐特性及腔型设计需考虑的问题, 为第四章的实验设计作了理论准备。

参考文献

- [1] 沈元壤著, 顾世杰译, 《非线性光学原理》, 科学出版社, 1987
- [2] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, 1962 (127): 1918
- [3] 姚建铨著, 《非线性光学频率变换及激光调谐技术》, 科学出版社, 1995
- [4] Stephen J. Broanan and Robert L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.*, 1979(QE-15):

415

第三章 高功率纳秒光参量振荡器理论研究

在光参量振荡器 (OPO) 众多不同的运转方式中 (连续波、纳秒、皮秒和飞秒 OPO), 纳秒 OPO 的发展最为成熟, 同时也是最为重要的一类 OPO。随着高功率泵浦源以及高损伤阈值非线性晶体 (如 β -BaB₂O₄ (BBO), LiB₃O₅ (LBO), KTiOPO₄ (KTP) 和 KTiOAsO₄ (KTA) 等) 的发展, 高功率高转换效率的光参量振荡器也得到进一步发展^[1,2]。实际激光系统输出的泵浦激光束并不是严格准直的, 而是存在一定的发散角。而且在实际应用中有时需要对光束聚焦, 加大光束的发散角, 比如在采用共焦腔时就存在此问题。这就意味着输入的泵浦光有些部分在 OPO 的非线性频率转换过程中不能完全实现相位匹配, 从而必将影响到转换效率。对于纳秒脉冲泵浦的 OPO, 晶体中所需要的相互作用长度较长, 在这种情况下由发散角、谱线宽度、温度带宽以及晶体非均匀性等引起的相位失配就尤为重要。

3.1 高功率纳秒 OPO 理论模型

有很多人^[3-9]曾对 OPO 的特性进行过数值模拟和理论分析, 其中的大部分工作都局限于小信号近似情况, 没有考虑泵光损耗及发散性。比如, S.J. Brosnan 和 R.L. Byer^[4]基于平行光和低泵光损耗的假设得到了描述参量过程的解析表达式。之后, J.A.C. Terry 等^[5]在保持低泵浦损耗假设的前提下加入了光学谐振腔模式。这些模型只能分析阈值特性, 不能描述 OPO 转换效率和能量分布。T. Debuisschert^[6]对于纳秒 OPO 提出了一个半解析模型, 考虑了泵光损耗和光束场的横向分布, 但忽略了光束的发散性。同样地, A. Fix 等^[7]对于 OPO 计算了输出脉冲的强度、总的脉冲能量、转换效率和波模频谱的光谱分布。他们的模型以三波混频方程的数值积分为基础, 对泵浦高斯脉冲进行分解, 并考虑了泵光亏损, 但是忽略了光束发散性。事实上, 只有少数文献在纳秒 OPO 模型中同时考虑了泵光亏损和光束发散性^[8,9]。在本论文中, 我们推广了 A. Fix 等的理论模型, 发展了高功率纳秒 OPO 的理论模型。我们的模型考虑了光束的发散性, 高斯光束在空间及时间上的强度分布, 双折射, 腔镜反射率, 大信号过程的泵光亏损效应, 以及泵浦光、信号光和闲频光在 OPO 谐振腔内的往返振荡。利用此模型, 我们可以研究纳秒 OPO 的最佳运转条件, 如: 最佳晶体长度、最佳泵浦强度、最大

转换效率等, 还可以分析 OPO 的动力学过程, 分析参量光的空间分布、角度分布和光束质量等问题。在本章我们首次利用此模型研究了高功率高效率纳秒 OPO 中发散角的影响。

光学参量振荡是包含泵浦光、信号光和闲频光的三波相互作用过程, 可用耦合波方程描述:

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} + \alpha_1 E_1 = i\kappa_1 E_3 E_2^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{dE_2}{dz} + \alpha_2 E_2 = i\kappa_2 E_3 E_1^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{dE_3}{dz} + \alpha_3 E_3 = i\kappa_3 E_2 E_1 e^{-i\Delta k z} \end{cases}, \quad (3.1)$$

$$\text{其中} \quad \kappa_i = \frac{\omega_i}{n_i c} d_{\text{eff}} \quad i=1, 2, 3 \quad (3.2)$$

1, 2, 3 分别代表信号光、闲频光和泵浦光。(1)式中, α_i 为 OPO 腔和非线性晶体的损耗系数, $\Delta k = |\Delta \vec{k}|$ 为波矢失配。(2)式中, ω_i 为圆频率, n_i 为非线性晶体的折射率, d_{eff} 为有效非线性系数。

光束强度 I 可表示为

$$I(r, t) = \frac{1}{2} n c \epsilon_0 |E(r, t)|^2. \quad (3.3)$$

相互作用的三波之间的相移量可由波矢失配 $\Delta \vec{k}$ 来表示。通常, 相移是由三波相互作用中偏离理想的相位匹配条件引起的:

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i. \quad (3.4)$$

对于理想高斯光束, 空间和时间上的电场振幅分布可表示为:

$$E(r, t) = E_0 \exp(-r^2(z)/w^2(z)) \exp(-t^2/\tau^2), \quad (3.5)$$

其中, E_0 为光束中心的电场振幅, τ 和 w 分别为激光脉冲光强度降落到中心值

的 $1/e^2$ 的点所定义的脉宽和光束半径。光束按下式描述的规律在空间传播:

$$w^2(z) = w_0^2 \left(1 + \left(M^2 \frac{\lambda(z-z_0)}{\pi w_0^2} \right)^2 \right), \quad (3.6)$$

式中 w_0 为束腰半径, z 为传播方向上的位置 (z_0 为束腰位置), λ 为波长, M^2 为光束质量因子。在本论文中, 我们考虑理想高斯光束, 即 $M^2=1$ 。将光束质量因子 M^2 代入上式可以方便地把此模型推广到光束质量不理想的情况。

将场振幅分解为实部和虚部, 设:

$$E_i(z) = A_i(z) + iB_i(z) \quad (3.7)$$

代入耦合波方程, 方程即分解为 6 个。任何实际的激光光束都由具有不同发散度的光波成分叠加组成, 这些光波组分的发散引起了 OPO 中的相位失配。我们把入射泵浦光的电场在空间和时间上分解为多个不同的光波组分, 将电场表示为它们的总和:

$$A = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^M A_0 \exp(-r_i^2(z)/w^2(z)) \exp(-t_j^2/\tau^2), \quad (3.8)$$

式中 A 为电场振幅的实部, A_0 为 A 在光束中心的值。电场振幅的虚部也有类似的表达式。我们把光束在径向分成 N 组分, 在脉冲时间上分成 M 组分。在径向不同位置的组分具有不同的角度发散, 因而导致不同的相位失配量 Δk 。

设 $E(J)$ 为单脉冲能量, 则

$$\begin{aligned} E(J) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} I(r,t) 2\pi r dr dt \\ &= I_0 \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-2r^2/w^2) 2\pi r dr \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-2t^2/\tau^2) dt \\ &= I_0 \frac{1}{2} \pi w^2 \tau \sqrt{\frac{\pi}{2}} \end{aligned} \quad (3.9)$$

其中 I_0 为中心强度。由上式, 中心光功率密度与单脉冲能量的对应关系为:

$$I_0 = \frac{2\sqrt{2}E(J)}{\pi w^2 \sqrt{\pi \tau}} = \frac{2.8284 E(J)}{\pi w^2 \sqrt{\pi \tau}} \quad (3.10)$$

单轴晶体中, 相位匹配要求波面法线在与非线性晶体光轴成 θ 角的方向传播, 选择适当角度 $\theta = \theta_m$ 入射, 满足 $\Delta k = 0$ 即实现完全相位匹配。若三波的波矢方向与 θ_m 有一偏差 $\Delta\theta$ (即 $\theta = \theta_m + \Delta\theta$), 则引起的波矢失配 Δk 为:

$$\Delta k = \frac{\omega_3}{c} n_3(\omega_3, \theta) - \frac{\omega_2}{c} n_2(\omega_2, \theta) - \frac{\omega_1}{c} n_1(\omega_1, \theta), \quad (3.11)$$

其中 n_i 是圆频率为 ω_i 的光波在晶体中的折射率, $i=1, 2, 3$ 。

将相位失配 Δk 对 θ 在 θ_m 附近展成泰勒级数, 有

$$\Delta k = \Delta k|_{\theta=\theta_m} + \left. \frac{d(\Delta k)}{d\theta} \right|_{\theta=\theta_m} \Delta\theta + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 \Delta k}{d\theta^2} \right|_{\theta=\theta_m} (\Delta\theta)^2 + \dots \quad (3.12)$$

下面我们对不同类型的单轴晶体中不同类型的相位匹配进行讨论。

1. 负单轴晶体中的 I 类相位匹配 (以 BBO 为例)

$$\begin{aligned} n_1(\omega_1, \theta) &= n_o(\omega_1), \quad n_2(\omega_2, \theta) = n_o(\omega_2) \\ n_3(\omega_3, \theta) &= n_e(\omega_3, \theta) = \left[\frac{n_o^2(\omega_3) n_e^2(\omega_3)}{n_o^2(\omega_3) \sin^2 \theta + n_e^2(\omega_3) \cos^2 \theta} \right]^{1/2}, \end{aligned} \quad (3.13)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\Delta k}{d\theta} &= \frac{dK_3}{d\theta} - \frac{dK_2}{d\theta} - \frac{dK_1}{d\theta} = \frac{dK_3}{d\theta} = \frac{\omega_3}{c} \frac{dn_e(\omega_3, \theta)}{d\theta} \\ &= -\frac{1}{2} \frac{\omega_3}{c} \left[\frac{n_o^2(\omega_3) \sin^2 \theta + n_e^2(\omega_3) \cos^2 \theta}{n_o^2(\omega_3) n_e^2(\omega_3)} \right]^{3/2} \left[\frac{n_o^2(\omega_3) - n_e^2(\omega_3)}{n_o^2(\omega_3) n_e^2(\omega_3)} \right] \sin 2\theta \quad (3.14) \\ &= -\frac{1}{2} \frac{\omega_3}{c} n_e^3(\omega_3, \theta) [n_e^{-2}(\omega_3) - n_o^{-2}(\omega_3)] \sin 2\theta \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \Delta k}{d\theta^2} &= \frac{d^2 K_3}{d\theta^2} = \frac{\omega_3}{c} \frac{d^2 n_e(\omega_3, \theta)}{d\theta^2} = -\frac{1}{2} \frac{\omega_3}{c} [n_e^{-2}(\omega_3) - n_o^{-2}(\omega_3)] \\ &\quad \times \left[3n_e^2(\omega_3, \theta) \frac{dn_e(\omega_3, \theta)}{d\theta} \sin 2\theta + 2n_e^3(\omega_3, \theta) \cos 2\theta \right] \end{aligned} \quad (3.15)$$