

近二十年来, 光学非线性及光学双稳由于其潜在的应用价值引起人们的极大兴趣。理论和实验的研究表明<sup>[11]-[17]</sup>, 基于Kerr型的非线性光学双稳能够出现在一维周期介质中。这些传统的周期结构通常包含两层结构: 一层的折射率为常数, 另一层的折射率依赖于光场的强度, 这种一维结构一般是异质结构, 我们称之为两组元光学超晶格。

另一方面, 另一类周期结构由于其在准位相匹配频率转换领域的成功应用而倍受人们的关注。该结构是自发极化矢量方向人工周期调制的铁电材料, 通常为同质结构。在这种结构中, 当位相失配不等于零时, 能够观察到类Kerr型的非线性现象, 它来自于Cascade二级非线性光学过程, 因为该过程是位相失配的, 基波能量周期性地转换为二次谐波能量, 所产生的二次谐波通过非线性介质时将周期性地回到基波。图7-4是这种非线性过程的示意图。另外, 由于LN、LT等铁电材料中的畴结构是180°型畴结构, 其折射率在整个晶体中为常数, 这一特征制约了光学谐振的产生。然而, 由于晶体的非线性电光系数为三阶张量, 其数值对应于正负畴结构是反号的。我们可以根据电光效应原理, 通过外加电场使得正负畴结构产生正负反号的折射率调制。这种折射率调制方法与传统的异质结构制备方法相比有明显的优点, 传统的异质结构制备方法如金属有机化学气相沉积(MOCVD)和脉冲激光沉积(PLD)方法很难在大周期和长时间的生长过程中保持周期沿生长轴的一致。综上所述, 这种同质超晶格结构具有以下两个特征: 依赖于光强的折射率变化和光学谐振效应, 这正是光学双稳所必备的两个因素, 因此, 我们有理由期待在这样的结构中出现光学双稳现象。我们把这种超晶格结构称之为四组元光学超晶格。

在非线性体块材料LN、LT中, 可以通过室温极化技术产生周期性的畴反转结构<sup>[18]-[19]</sup>。通常, 畴结构沿着x轴周期排列, 根据准位相匹配理论, 为了获得Cascade二级非线性现象, 正畴或负畴的宽度必须大于倍频的相干长度, 为了简单起见, 我们选择正负畴的宽度为两倍的相干长度。每一个畴区域中, 由于位相失配, 在0-1c区域, 总的效果是基波光场产生二次谐波光场, 在1c-2lc区域, 二次谐波光场回到基波光场(图7-4), Cascade二级非线性系数可以表示为:

$$d_3^{\text{casc}} = -\frac{1}{2} \frac{\omega_2}{n_2 c} \frac{d_1 d_2}{\Delta k}, \quad \chi^{\text{casc}} = (3/4) d_3^{\text{casc}}$$

$$d_3 = d_3^{\text{dir}} + d_3^{\text{casc}}$$

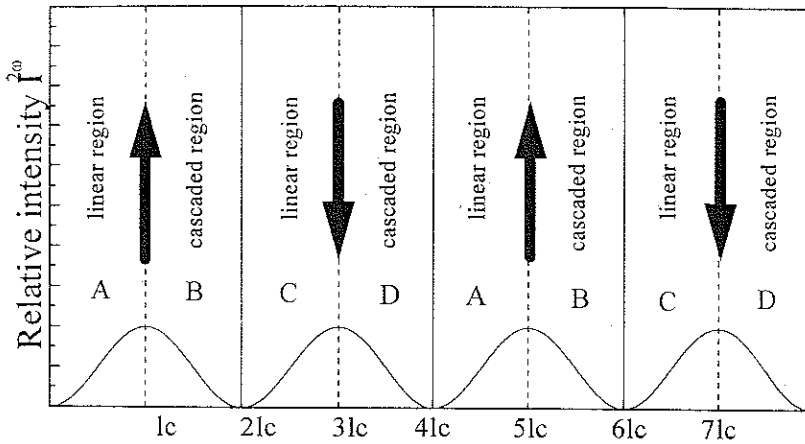


图7-4 波矢失配情况下的二次谐波与 Cascade 非线性过程

可以看出, Cascade 二级非线性系数的符号和大小可以由波矢失配  $\Delta k$  来调节, 对于 LN、LT 晶体, 存在着正常的色散关系  $\Delta k > 0$ , 所以  $d_3^{casc} < 0$ 。对于自发极化矢量方向周期调制的超晶格, 在  $z$  方向加外电场, 其正负畴所对应的折射率分别调节为  $n_1 + \delta n$  和  $n_1 - \delta n$ ,  $n_1$  为体块材料对应于基波波长的折射率。当入射激光光强较弱时, Cascade 二级非线性所引起的折射率随光强的变化可以忽略, 而当光强较强时, 情况就完全不一样了。每一畴区(正畴或负畴)可以分成两个部分: 折射率等于  $n_1 + \delta n$  或  $n_1 - \delta n$  的线性区域 ( $0-1c$ ), 折射率等于  $n_1 + \delta n + ((d_3^{dir} + d_3^{casc})/n_1)|E|^2$  和  $\delta n$  和  $n_1 - \delta n + ((d_3^{dir} + d_3^{casc})/n_1)|E|^2$  的非线性区域。因此, 该周期超晶格可被认为是包含四个组元。也就是说, 由于考虑了 Cascade 效应, 该周期结构由两组元变成了四组元。我们在计算中忽略直接的三级非线性极化率(四阶张量), 主要有下面两个原因: 通常的三级非线性极化率既存在于线性区域也存在于非线性区域, 而且由于光场强度是连续变化的, 对两组元向四组元的转变没有贡献, 而 Cascade 非线性仅仅出现在畴区的非线性区域, 正是由于 Cascade 二级非线性的存在导致了折射率依赖于光强的周期性变化。此外, 由于应用了 LN、LT 晶体的最大非线性关系系数  $d_{33}$ , 其  $d_3^{casc}$  ( $\sim 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) 比  $d_3^{dir}$  ( $\sim 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) 大一个数量级。我们采用推广的转移矩阵方法计算激光场强在该四组元周期超晶格中的传播情况。

假设样品包括  $M$  个正畴和负畴,  $0 \leq m \leq M$  覆盖了所有畴区, 由于每一块畴的区域激光场强  $E(x)$  是变化的, 由此导致了折射率随空间的变化, 为了克服这一困难, 我们将非线性区域分成许多薄层, 每一薄层的厚度小到波长的量级。因此, 在薄层中光场强度和折射率都可以被看作常数, 转移矩阵计算方法可以用在该周期结构中。

设入射光由左向右入射, 在  $x > x_M$  区域, 仅有透射光存在, 将光场强度写成  $E(x,t) = E(x)\exp(i\omega t)$  的形式,  $E(x)$  有下列形式:

$$E_{m,n} = \begin{cases} S\exp(ik_1x) + R\exp(-ik_1x), & x < x_0, \\ F_{m,n}\exp[ik_{m,n}(x - x_{m,n})] + B_{m,n}\exp[-ik_{m,n}(x - x_{m,n})], & x_{m,n} < x < x_{m,n+1}, \\ T\exp[ik_1(x - x_M)], & x \geq x_M \end{cases} \quad (7-14)$$

$E(x)$  是第  $m$  畴区非线性区域中第  $n$  薄层中的光场场强, 对应的波矢  $k_{m,n} = 2\pi n_{m,n}(x)/\lambda$ , 而在线性区域, 对应的波矢  $k_1 = 2\pi(n_1 \pm \delta n)/\lambda$ 。

根据光场强连续和光场强导数连续的边界条件, 我们能得到分别对应于线性和非线性区域的循环关系:

$$\begin{aligned} F_m &= \frac{1}{2} \exp(-ik_1 l_c) \left\{ \left[ 1 + \frac{n_{m,0}}{n_1} \right] F_{m,0} + \left[ 1 - \frac{n_{m,0}}{n_1} \right] B_{m,0} \right\} \\ B_m &= \frac{1}{2} \exp(+ik_1 l_c) \left\{ \left[ 1 - \frac{n_{m,0}}{n_1} \right] F_{m,0} + \left[ 1 + \frac{n_{m,0}}{n_1} \right] B_{m,0} \right\} \end{aligned} \quad (7-15)$$

$$n_{m,0} = n_1 \pm \delta n + (d^{\text{casc}} / (n_1 \pm \delta n)) |F_{m,0} + B_{m,0}|^2$$

$$\begin{aligned} F_{m,n-1} &= \frac{1}{2} \exp(-ik_{m,n-1} d^*) \left\{ \left[ 1 + \frac{n_{m,n}}{n_{m,n-1}} \right] F_{m,n} + \left[ 1 - \frac{n_{m,n}}{n_{m,n-1}} \right] B_{m,n} \right\} \\ B_{m,n-1} &= \frac{1}{2} \exp(+ik_{m,n-1} d^*) \left\{ \left[ 1 - \frac{n_{m,n}}{n_{m,n-1}} \right] F_{m,n} + \left[ 1 + \frac{n_{m,n}}{n_{m,n-1}} \right] B_{m,n} \right\} \end{aligned} \quad (7-16)$$

$$n_{m,n} = n_1 \pm \delta n + (d^{\text{casc}} / (n_1 \pm \delta n)) |F_{m,n} \exp(ik_{m,n} d^*) + B_{m,n} \exp(-ik_{m,n} d^*)|^2$$

$$n_{m,n-1} = n_1 \pm \delta n + (d^{\text{casc}} / (n_1 \pm \delta n)) |F_{m,n} + B_{m,n}|^2$$

带一个下标的  $F$  和  $B$  对应于线性区域向前、向后传播的光场的振幅, 带两个下标的  $F$  和  $B$  对应于非线性区域向前、向后传播的光场的振幅,  $d^*$  是非线性薄层的厚度, 以上公式对于正负畴都是适用的。我们使用双重迭代方法来解上述的循环方程。

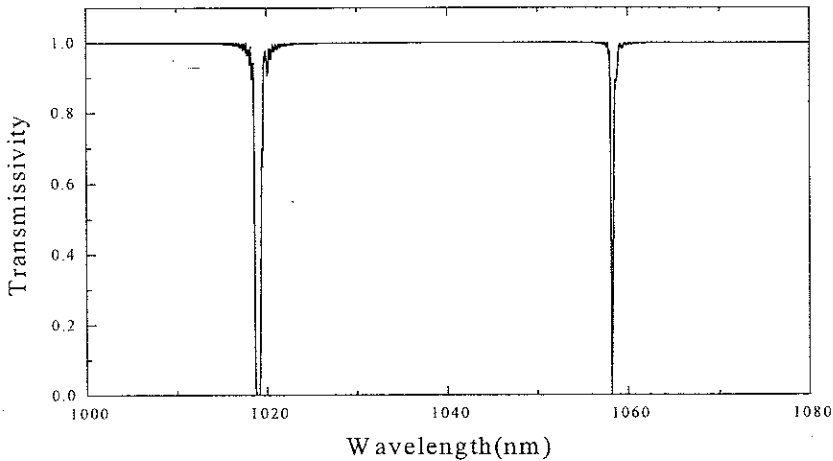
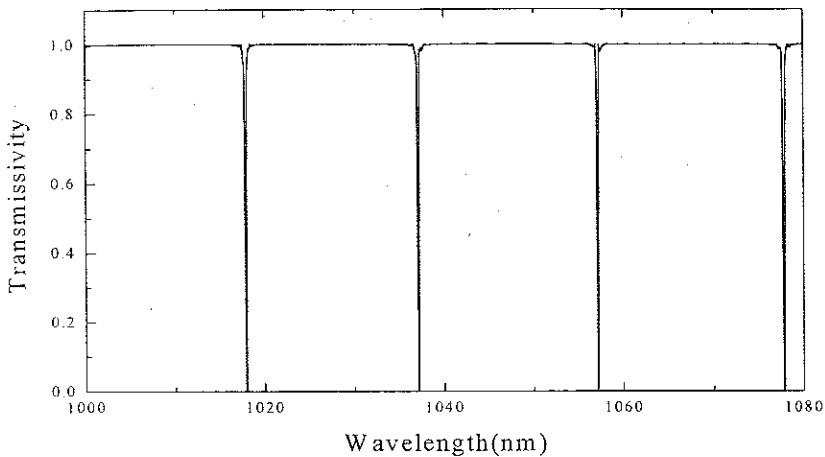


图7-5  $\text{LiNbO}_3$  周期光学超晶格中的透射率随波长的变化关系, (a)线性透射率 (b)非线性透射率。畴的宽度等于  $6.6\mu\text{m}$ ,  $n=2.1562$ 。对应于四组元超晶格结构。

图 7-5(a) 和 (b) 分别是采用上述方法计算的周期极化 LN 晶体中线性透射谱和非线性透射谱, 正负畴的宽度均等于  $6.6\mu\text{m}$ , 远大于入射光的波长。在线性透射谱中, 伴随着一系列通带出现了周期性分布的禁带, 透射谱的禁带边缘存在着非常尖锐的变化梯度, 这一特征对于产生双稳是十分有益的。当非线性区域中存在着依赖于光强的折射率变化的情况, 非线性透射谱中也同样存在着周期性分布的禁带。禁带的形状和分布强烈地依赖于电光效应和 Casacde 二级非线性引起的折射率调节。当外加电场增加时, 正畴、负畴折射率之差也随之增加, 这种折射率差异的增加将导致

谐振效应的增强、禁带加宽及禁带数目的增加。比较图7-5(a)的线性透射谱, 图7-5(b)中非线性谱中的禁带分布周期几乎增加了一倍, 其原因可能来自于两组元结构向四组元结构的转换。我们选择和优化折射率调节和畴区宽度等计算参数, 目的是能够使工作波长恰好位于禁带的边缘并且使对应的正负畴宽度等于两倍的相干长度, 具体参数标于图7-5中,  $\delta n = 0.002$  对应于外加电场的场强为  $10^4 \text{V/mm}$ 。在我们的计算中, 由于 Cascade 非线性系数取负值, 光学双稳效应发生在低禁带边缘。

非线性周期结构能够显示输出光强对输入光强的滞后效应, 图7-6是透射光强和入射光强的变化曲线, 图中计算了三种不同的波长, 线性透射谱的禁带位于  $1057.0 \text{nm}$ , 波长的调节分别对应于  $0.5, 1.0, 1.5 \text{nm}$ , 当调节量大于某一临界值时, 输出--输入光强的变化呈现出双稳滞后, 入射和透射光强的单位为  $2 \text{MW/cm}^2$ 。产生双稳效应所需要的折射率调节为  $10^{-5}$ , 比传统的两组元周期结构低一到两个数量级。

显然, 利用电光效应和 Cascade 非线性效应在周期极化的 LN 晶体中能够产生低阈值的光学双稳效应, 在新型的光学双稳器件的研制领域有广阔的应用前景。

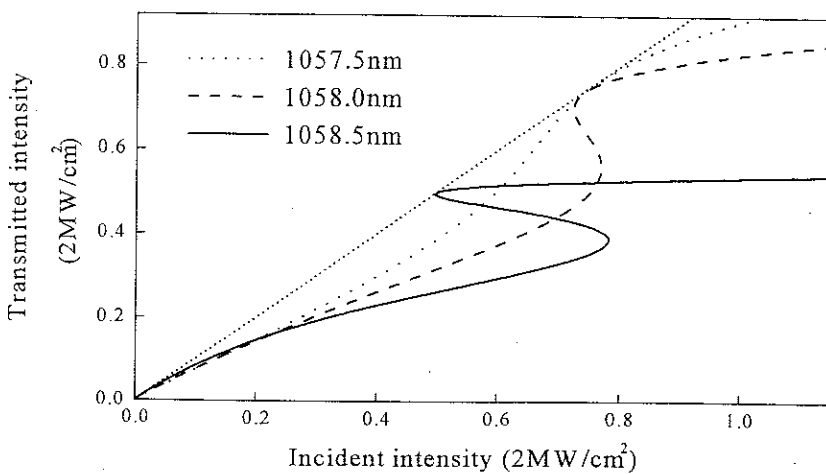


图7-6  $\text{LiNbO}_3$  周期光学超晶格中的透射光强与入射光强的变化关系, 点划线对应于透射率为一。

#### 参考文献:

- [1] C.Flytzanis and N.Bloemberge, Quantum Electron 4 271 (1976)
- [2] T.K.Gustafson, J.P.E.Tara, P.L.Kelley and R.Y.Chiao Opt. Commun. 2 17(1970)
- [3] D.N.Klyshko and B.F.Polkovnikov, Sov. J. Quantum Electron 3 324(1972)
- [4] Y.N.Karamzin and A.P.Sukhorukov, JETP Lett. 20, 339(1974)
- [5] Y.N.Karamzin and A.P.Sukhorukov, Zh Eksp. Tero. Fiz. 68 834(1975)
- [6] N.R. belashenkov, S.V.Gagarskii and M.V.Inochkin, Opt. Spectrosc, 66 806(1989)
- [7] G.I.Stegeman, M.S.Bahae, E.W.Van. Stryland and G. Assanto, Opt. Lett.18 13(1993)
- [8] G.Assanto, G.I.Stegeman, M.S.Bahae. E.W.Van. Stryland Appl. Phys. Lett. 62 1323(1993)
- [9] L.Noirie, P.Vidakovic and J.A.Levenson, J. Opt. Soc. Am. B 14 1(1997)
- [10] A.Berzanskis, K.H.Feller and A Stabinis , Opt. Commun. 118 438(1995)
- [11] Winful H G, Maburger J H and Garmire E Appl. Phys. Lett. 35 379 (1979)
- [12] W. Chen and D.L.Mill Phys. Rev. Lett. 58 160  
W. Chen and D.L.Mill Phys. Rev. B. 36 6269
- [13] L. Kaha, K. Huang and D.L.Mill Phys. Rev. B 39 12449(1989)
- [14] J. He and M.Cada Appl. Phys. Lett. 61 2150(1992)
- [15] J. He and M.Cada .IEEE J. Quantum Electron. 27 1182(1991)
- [16] S. Janz, J. He and Z.R.Wasilewski Appl. Rev. Lett. 67 1051(1995)
- [17] D.L. Mill and S.E.Trullinger Phys.Rev. B 36 947(1987)
- [18] S.Z.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming J. Phys. D: Appl. Phys 28 2389
- [19] L.E.Myers, G.D. Miller, Nonlinear Optics Conf. paper PHD

## 第八章 结 论

自人工调节超晶格材料问世以来,光学超晶格以其特有的应用前景成为凝聚态物理和材料科学领域倍受人们关注的新型微结构材料,这种非线性微结构材料已成为光电功能材料的重要组成部分,在频率转换、信号处理、光计算等领域有着广泛的应用前景。新型的高科技产业——光电子产业正在蓬勃兴起,发展光电子学的核心是发现、设计并制备符合应用要求的光电功能材料。光学超晶格材料是一种具有特殊光电功能的非线性光学材料,研究光学超晶格中的非线性光学效应已成为探索新型光电功能材料的基础和先导。光学超晶格中非线性效应的研究主要涉及准位相匹配条件下的激光变频效应(二次谐波、三次谐波、四次谐波等)和准位相失配条件下的 Cascade 二阶非线性光学现象及其相关的非线性效应。就其研究方法和研究模式而言,光学超晶格中的非线性光学效应研究包括初级研究阶段和高级研究阶段。初级研究阶段主要是从现有的材料和现有的结构(如 Fibonacci 结构)出发研究其可能的应用价值。而研究的高级阶段则是从特定应用所需要的性质出发来进行结构和材料设计,进而去设计和制备一些自然界中并不存在的新结构和材料。本论文从理论和实验两个方面、从初级和高级两个研究阶段研究了光学超晶格中的准位相匹配条件下和准位相失配条件下的非线性光学效应,主要结论如下所列:

1. 对纵向极化与横向极化的关系作了初步的研究,从实验上证实了横向极化对整个极化反转过程的影响。
2. 研究了基波衰减情况下基波与各次谐波之间的耦合振幅方程,得到了基波衰减与小信号近似条件下的各次谐波转换效率的数值计算结果和解析表达式。分别得到了倍频失配及和频失配两种条件下的谐波转换效率。
3. 研究了耦合系数比与各次谐波转换效率的关系,当  $\kappa_1 : \kappa_2 = 8 : 9$  时,可以获得高效、持续的三次谐波输出。
3. 从理论和实验两方面系统地研究了推广的 Fibonacci 结构的激光变频效应,推导出有效非线性系数的一般表达式,与数值 Fourier 变换的结果一致。得到了有效非线性系数与各结构参数(基本单元的正畴宽度、A、B 基本单元的宽度之比)的变化关系。

法、多参量循环方法), 拓宽微结构设计的范围(二维光学超晶格、光子带隙晶体), 建立起一套耦合参量过程及其他非线性光学过程的专家系统。另一方面, 我们将把波矢失配条件的非线性光学效应的研究从体块材料推广到周期超晶格材料、从周期超晶格推广到准周期超晶格甚至非周期结构。在理论和实验上进一步将波矢失配条件下非线性光学效应的研究工作深化下去。

## 致 谢

在即将完成博士论文之际，心中感慨万分。攻读博士学位期间，我得到了许多热心人士的关心和帮助，谨在此向他们表示衷心的感谢。

衷心感谢闵乃本先生，闵先生渊博的学识、敏锐的物理直觉以及严谨、求实的治学风格给学生留下了深刻的印象。特别是闵先生对凝聚态物理最前沿研究方向的洞察力，体现了一位物理学大师的远见卓识，使学生终生难忘。感谢葛传珍教授无微不至的关心和帮助。

衷心感谢朱永元教授多年来无私、真诚、兄长般的关怀和帮助，感谢他在论文完成过程中给予的认真、耐心、具体的指导。他扎实的理论功底、活跃的物理思想使我受益匪浅。感谢吴素珍医生在生活中给予的诸多关心。

衷心感谢祝世宁教授这些年来工作、学习中对我的热情相助和耐心指教，他对论文的完成提出了许多建设性的指导意见。他求实的学风、对实验工作的一丝不苟给了我深刻的启迪。

感谢焦洪震副教授的关心和照顾。感谢陆延青副教授、陈延峰教授、雷新亚副教授、王振林副教授、朱劲松教授等有益的帮助和指教。感谢蒋国忠总工程师在制备样品方面给予的帮助。感谢杨永顺高级实验师、刘金生同志为作者的工作提供的方便。

感谢张超、陈延彬、刘辉、杨素霞、王海峰、张志勇等诸位学友在工作和实验过程中的合作和帮助。

感谢南通师范专科学校的部分领导、同事、朋友在我攻读博士学位期间对我的理解和支持。

几年来，我对妻子和女儿一直有着深深的歉意，她们给了我真诚的理解和无私的奉献，无怨无悔地支持我完成学业。谨以这篇论文作为对她们一点精神上的回报。

本工作得到国家基础重大项目“攀登计划”、国家高科技发展“863”项目以及国家自然科学基金的资助。

## 攻读博士学位期间发表和待发表的论文:

1. Electron probe microanalysis of periodic domain inversion in  $\text{LiNbO}_3$  by Ti-diffusion

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Hong Shu, Nai-ben Ming

Materials Letters 78, 2752(1997)

2. Optical bistability in periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  induced by cascaded second-order nonlinearity and electro-optic effect

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Nai-ben Ming

J. Phys: Condens. Matter 10, (1998)

3. Quasi-phase-matched harmonic generation through coupled parametric processes in a quasiperiodic optical superlattices

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Nai-ben Ming

J. Appl. Phys. 84(12) 12 (1998)

4. The effective nonlinear coefficients and quasi-phase-matched harmonic generation

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Nai-ben Ming

Proceedings of SPIE Vol 3556 142(1998)

5. The cascade nonlinearity for optical bistable effect in periodically poled  $\text{LiTaO}_3$

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Nai-ben Ming

Ferroelectrics (accepted)

6. Nonlinear optical characterization of a generalized Fibonacci optical superlattices

Yi-qiang Qin, Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Nai-ben Ming

submitted to Appl. Phys. Lett.

7. Experimental realization of second harmonic generation in a Fibonacci optical superlattices

Shi-ning Zhu, Yong-yuan Zhu, Yi-qiang Qin, Hai-feng Wang, Chuan-zhen Ge and Nai-ben Ming

Physical Review Letters, 78, 2752(1997)

8. Further studies on ultrasonic excitation in an acoustic superlattices

Yong-yuan Zhu, Shi-ning Zhu, Yi-qiang Qin and Nai-ben Ming

J. Appl. Phys. Vol. 79 No.5 2223(1996)

9. Acoustic superlattices and ultrasonic waves excited by crossed-field scheme  
Yong-yuan Zhu, Yan-feng Chen, Shi-ning Zhu, Yi-qiang Qin and Nai-ben Ming  
Materials Letters 28 503(1996)
10. Curie temperature and domain inversion in proton exchanged LiTaO<sub>3</sub>  
Y.Y Zhu, Z.Y. Zhang, M.Gu, S.N.Zhu, Y. Li, Y.Q Qin and N.B. Ming  
Materials Letters 27 333(1996)
11. A 407-nm blue light generation in a bulk periodically poled LiTaO<sub>3</sub>  
Shi-ning Zhu, Yong-yuan Zhu, Hai-feng Wang, Zhi-yong Zhang,  
Yi-qiang Qin and Nai-ben Ming  
J. Nanjing University (Natural Science), 31, 668(1995)
12. Harmonic generation in a quasiperiodic optical superlattices with Fibonacci sequence  
Yi-qiang Qin, Shi-ning Zhu, Yong-yuan Zhu and Nai-ben Ming  
97' Symposium on Condensed Matter Physics for Chinese Young Scholar,  
August 25-30 1997
13. Study on domain inversion and the Curie temperature in proton exchanged LiTaO<sub>3</sub>  
Zhi-yong Zhang, Yong-yuan Zhu, Min Gu, Shi-ning Zhu, Yun Li, Yi-qiang Qin and  
Nai-ben Ming  
Progress in Natural Science Vol. 6 No.5 Oct. 1996
14. 准周期铁电超晶格中的多波长二次谐波产生  
秦亦强, 王海峰, 朱永元, 祝世宁, 闵乃本  
物理 26 卷 12 期 1997
15. 质子交换钽酸锂晶体电畴反转和居里温度关系的研究  
张志勇、朱永元、顾民、祝世宁、李昀、秦亦强、闵乃本  
自然科学进展-国家重点实验室通讯 第6卷 第5期 1996年9月