

目录

摘要

Abstract

第一章: 前言

参考文献

第二章: 室温极化技术及光学超晶格的制备

第一节: 脉冲电场室温极化技术

第二节: LiTaO_3 晶体室温极化特性的研究

参考文献

第三章: 基波衰减及位相失配条件下的激光变频效应研究

第一节: 基波、二次谐波、三次谐波的振幅耦合方程

第二节: 小信号近似条件下的各次谐波转换效率

第三节: 考虑基波衰减条件下的各次谐波转换效率

参考文献

第四章: 推广的 Fibonacci 光学超晶格中的激光变频效应

第一节: 几种典型的二组元准周期结构

第二节: 推广的 Fibonacci 准周期光学超晶格的理论分析

第三节: 有效非线性系数的变化规律

第四节: 二次谐波、三次谐波的实验结果

第五节: 推广的 Fibonacci 结构与 Intergrowth 结构的比较

第六节: 推广的 Fibonacci 结构有效非线性光学系数的简化和进一步推广

参考文献

第五章: 三组元准周期光学超晶格中的三次谐波产生

第一节: 三组元 Fibonacci 结构及投影原理

第二节: 准位相匹配条件下的谐波输出

参考文献

第六章: 耦合参量过程的微结构设计 with 复合准位相匹配理论

第一节: 周期结构光学超晶格的三次谐波产生

第二节: 复合准位相匹配理论

第三节: 复合准位相匹配理论在周期结构中的应用

第四节: 复合准位相匹配理论在准周期结构中的应用

第五节: 复合准位相匹配理论的进一步讨论

参考文献

第七章: LiNbO_3 光学超晶格中的 Cascade 二级非线性光学效应

第一节: Cascade 二级非线性光学现象

第二节: 基于二级 Cascade 非线性现象的基波非线性相移

第三节: LiNbO_3 周期光学超晶格中的光学双稳效应

参考文献

第八章: 结论

致谢

攻读博士学位期间发表的论文

摘要

光学超晶格是近年来凝聚态物理和材料科学领域倍受人们关注的人工微结构材料,具有特殊的光电功能。光学超晶格中的非线性光学效应研究主要涉及准位相匹配条件下的激光变频效应和准位相失配条件下的 Cascade 二级非线性光学现象。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经历了初级研究阶段向高级研究阶段的飞跃。初级研究阶段主要是从现有的材料结构出发探讨和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材料设计,进而去设计和制备一些自然界并不存在的新结构和新材料。从而拓宽了研究视野和应用范围。本文从理论和实验两个方面、从初级和高级两个研究阶段全面系统研究了光学超晶格中的非线性光学效应,主要包括以下几方面内容:

1. 研究了 LiTaO₃ 晶体的极化反转特性,对纵向极化与横向极化的关系作了初步的研究。
2. 系统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,比较了基波衰减与小信号近似条件下的各次谐波转换效率。研究了准位相失配对谐波转换效率的影响。研究了耦合系数比与各次谐波转换效率的关系。
3. 从理论和实验两方面首次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,并与数值 Fourier 变换的结果进行了比较。研究了有效非线性系数与各结构参数的变化关系。首次设计和制备了具有 $m=2$ Fibonacci 序列的准周期光学超晶格 LiTaO₃, 利用 $1.7015\mu\text{m}$ 的基波光源获得转换效率 22%, 波长为 $0.5672\mu\text{m}$ 的黄光三次谐波。比较了 $m=2$ Fibonacci 结构与 Inter-Growth 结构的倒空间性质,利用二次谐波谱拟合出非寻常光的折射率色散关系。对有效非线性系数的一般表达式进行了简化和更为广泛的推广,得到了更为普遍的二组元准周期结构。
4. 研究了三组元 Fibonacci 结构中的激光变频效应,计算了准位相匹配条件下的二次、三次谐波输出。
5. 从耦合参量过程的微结构设计原理出发,首次提出了复合准位相匹配理论,提出了在周期-周期、周期-准周期混合结构中产生高效高次谐波的

新思路,发现了新的消光现象,发现了倒格矢耦合过程中多重组合的简并现象,为制备在任意基波波长产生高效三次谐波的谐波发生器提供了理论基础。为新的微结构材料的制备与设计作了有益的探索。并且成功地制备出周期-周期、周期-准周期光学超晶格。

6. 研究了波矢失配(位相失配)条件下光学超晶格中的非线性光学效应。(首次提出了在光学超晶格材料中实现位相偏移的新思路 and 理论框架,首次计算了基于电光效应和 Cascade 二级非线性光学效应在周期超晶格材料中产生的光学双稳效应。与传统的二组元光学超晶格相比较,这种结构具有较低的光学双稳阈值。)

Abstract

Recently, optical superlattices has been paid attention in condensed matter physics and materials science fields, which has particular photo-electric function. The research of nonlinear optical effect in optical superlattices is mainly involved two aspects: The quasi-phase-matched frequency conversion and the cascade second-order nonlinearity under the phase-mismatched condition. In view of research methods and modes, the research of nonlinear optical effect in optical superlattices consists of two stages: primary stage and advanced stage. The research of primary stage is to study the properties and the possible application of the existed materials and structures. In contrast to primary stage the research of advanced stage is to design and fabricate the new structures and materials that not exist in nature according to certain needs of application, which has widened the research view and application scope. We systematically investigated the nonlinear optical effects in optical superlattices both theoretically and experimentally, both in primary stage and advanced stage. The obtained results are described as follows:

1. The features of the polarization reversion of LiTaO_3 has been studied, especial the relationship between the forward poling and lateral poling process.
2. The coupling amplitude equations of fundamental and harmonic waves have been studied systematically in the depleted fundamental wave condition. The conversion efficiencies have been deduced both in the quasi-phase-matched and phase-mismatched condition as well as the depleted fundamental wave and the small signal approximation condition. The relationship between the conversion efficiencies and ratio of coupling coefficients has been studied.
3. The laser frequency conversion processes have been systematically studied both theoretically and experimentally in generalized Fibonacci optical superlattice. The general expression of the effective nonlinear optical coefficients has been deduced. The dependence of the effective nonlinear optical coefficients on various structure parameters has also been studied. We in the first time designed and fabricated the generalized

Fibonacci optical superlattice ($m=2$), obtained the yellow light of $0.5672\mu\text{m}$ from the fundamental light of $1.7015\mu\text{m}$, the frequency conversion efficiency got to 22%, compared the property of vector space in the generalized Fibonacci structure ($m=2$) with that in the Inter-Growth structure. The effective nonlinear coefficients have been simplified and generalized and the more general two-components quasi-periodic structures have been obtained.

4. The laser frequency conversion effect in three-components Fibonacci structures has been studied.

5. We in the first time proposed the compound quasi-phase-matched theory and introduced the novel thought of microstructures design, provided the novel method that produce the high harmonic with high efficiency in mixed structures such as periodic-periodic structure and periodic-quasi-periodic structure, found the new extinction phenomenon and the degenerate rule in those mixed structure. The compound quasi-phase-matched theory set up the theory foundation of microstructures design. The experimental results is in good agreement with the theory.

6. We have studied the nonlinear optical effects in optical superlattices under the vector mismatched condition. The theory frame realizing the phase-shift in the superlattice materials has been proposed in the first time. We have calculated the nonlinear bistable effect in the periodically poled LiNbO_3 induced by cascade second-order nonlinearity and electro-optic effects, which shows the much lower threshold for bistability than those based on the traditional periodically layered structure.

第一章 前言

自60年代以来,随着现代科学技术的发展,学科间的交叉日益增加。人工调制微结构(超晶格)材料已成为凝聚态物理学的研究热点。从组成超晶格的基质材料来看,人工超晶格可分为半导体超晶格^{[1][3]}、金属超晶格^{[4][6]}及介电体超晶格^[7]。半导体超晶格和金属超晶格的理论及实验研究工作已经取得了重要进展。其中,半导体超晶格为微电子和光电子器件的发展提供了重要的基础材料。近年来,随着现代科学技术的发展,介电体超晶格的研究逐渐受到物理工作者的重视,这些新的人工超晶格材料具有十分奇特的物理现象,包括尺寸效应、巨介电常数效应、经典波的激发与传播、光子带隙。特别是介电体超晶格中的非线性光学效应,在激光及光电子领域有着十分诱人的应用前景。事实上,介电体超晶格中非线性光学效应的研究可以追溯到1962年,是年Bloembergen等提出了非线性光学中的准位相匹配(QPM)理论^[8]:通过晶体非线性极化率的周期性调制可以补偿光参量过程中由于折射率色散造成的基波与谐波之间的位相失配(波矢失配),以获得非线性光学效应的增强。这一思想奠定了介电体超晶格在非线性光学领域理论和应用研究的基础。80年代后期,由于QPM理论和微结构材料在光纤通讯和信息存储领域可能发挥的独特作用,具有调制结构的介电体超晶格,特别是具有周期铁电畴结构的超晶格研究取得了重要突破。在 LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KTiOPO_4 等铁电体超晶格中获得了高效的紫外、可见光、红外的倍频和光参量振荡输出,以光变频为目标的实用化开拓将形成新的光电子产业^{[9][11]}。铁电体超晶格在T赫兹毫米波的产生及其在超高频通信和微分成象领域的研究也显示了广阔的应用前景^{[12][13]}。利用铁电体超晶格能够制备高频的声学谐振器,低插入损耗的超声换能器及其他高频超声器件^{[14][15]}。与前面提到的半导体超晶格、金属超晶格相比,具有周期铁电畴结构的超晶格,其微结构调制是通过铁电畴自发极化矢量取向的周期调制来实现的,相应的非线性光学系数、电光系数也得到了周期调制,这是一种同质结构的铁电体超晶格,也称之为光学超晶格。

早期的人工调制超晶格研究主要涉及的是周期超晶格结构。1984年,Shechtman等首先在Al-Mn合金中发现了五次对称性,提出了准晶的概念^{[16][17]},这是凝聚态物理学发展史上的重要里程碑。之后,大量的理论和

实验工作集中于准晶的结构和谱学性质的研究^{[18]-[19]}。同时,准周期超晶格(一维准晶)的研究工作也得到了迅速发展。1985、1986年,准周期半导体超晶格^[18]和金属超晶格^[20]相继制备成功。特别是对金属超晶格的结构、物性进行了较系统的研究并预言了其在软X射线及真空紫外波段的应用前景。进入九十年代,闵乃本院士领导的研究小组首先将准周期超晶格的概念引入介电体,提出了准周期光学超晶格的构想^{[21]-[22]},并且利用室温极化技术成功地制备出具有Fibonacci序列的钽酸锂(LT)准周期超晶格,获得了高效的三倍频绿光输出^[23],这是自准晶发现以来,有关准晶、准周期材料的第一个有应用价值物理效应的实验结果,开拓了微结构材料研究的新领域。另一方面,随着科学技术的突飞猛进,人们对微结构材料的研究正在逐步突破传统的研究模式,即不再局限于从现有的材料出发或从已知序列制备相应的微结构材料出发(如Fibonacci超晶格)来研究其结构、性质及其应用,而是从特定应用所需要的性质出发来进行微结构材料设计,进而去设计和制备一些自然界并不存在的新的结构和材料,从而获得更广泛的应用。这一研究模式、研究思想、研究方法的突破,必将在微结构材料的研究与应用领域产生革命性的飞跃,引导我们从必然王国最终走向自由王国。

基于传统的非线性光学理论,在非线性光学晶体中,为了获得高效的谐波输出,必须满足严格的位相匹配条件。通常人们利用双折射方法(BPM)来实现位相匹配,这一技术已在频率转换领域得到广泛应用。然而,匹配波段、匹配方向及位相匹配温度的要求使得我们在材料选择上受到极大的限制,许多优秀的非线性光学晶体因为不能满足位相匹配条件而得不到充分利用。准位相匹配理论从根本上消除了位相匹配对材料的限制。与位相匹配不同,准位相匹配不要求位相失配为零,它利用非线性光学系数的周期性跃变来补偿由色散引起的位相失配,实现激光频率转移效应的增强。由此可见,位相匹配及准位相匹配分别是在非线性均匀材料和微结构材料中实现高效频率转移(包括倍频(SHG)、光参量放大(OPA)和光参量振荡(OPO))的必备条件。特别是QPM方法给非线性光学材料的开发和研究注入了新的活力。

另一方面,对于均匀材料及微结构材料,当位相失配(波矢失配)或准位相失配时,晶体中的二次谐波光强会随着晶体长度的增加作周期性的变化,其周期为相干长度的两倍。这一周期性变化导致了一种新的非线性光学现象——Cascade 二级非线性光学效应 $\chi^{(2)}(\omega; 2\omega, -\omega) : \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 的产

生^{[24]-[26]}, 并已经逐渐成为非线性光学领域的又一研究热点。事实上, Cascade效应来源于基波产生倍频和倍频回到基波两个位相失配(波矢失配)条件下频率转移过程的级联。Cascade效应带来的重要物理现象是非线性位相偏移^{[26]-[27]}。由于位相失配, 晶体中的基波包含由倍频通过差频回到基波的成份, 从而导致基波的位相在晶体中传播时发生漂移, 出现了光信号的自聚焦和自散焦现象^{[28]-[29]}。另外, Cascade二级非线性光学系数(三阶张量)具有与三级非线性光学系数(四阶张量)十分相似的特征, 因此Cascade效应能够在晶体中产生依赖于光强的折射率变化。这种类Kerr的反馈机制也能够产生带隙孤波激发^{[30]-[31]}和光学双稳效应。以上由Cascade效应带来的非线性光学现象已经在全光开关、光学晶体管、光脉冲压缩及整形器制备等领域展示出潜在的应用前景。本论文系统研究了周期、准周期光学超晶格中的非线性光学效应, 主要包括准位相匹配条件下的激光变频效应和波矢失配条件下的Cascade效应, 获得了一些颇具意义的结果。第二章介绍了室温极化制备光学超晶格的方法。第三章从理论上研究了基波衰减以及各种位相失配条件下的激光变频效应。对各种情况下的各次谐波效率进行了全面比较。第四章从理论到实验研究了推广的Fibonacci光学超晶格中的激光变频效应。对相应的理论体系作了多层次的推广。第五章对多组元准周期光学超晶格中的三次谐波产生作了简单介绍。第六章从耦合参量过程微结构设计的新思维出发, 提出了复合准位相匹配理论。并研究了周期-周期、周期-准周期混合结构中的非线性光学效应。第七章介绍了Cascade二级非线性光学现象及相应的非线性相移和光学双稳效应。第八章是本论文主要结论的总结。

参考文献:

- [1] L.Esaki and R.Tsu, IBM J. Res. Develop. 14 686 (1970)
- [2] L.L.Chang, Synthetic Modulated Structure, edited by B.C.Giessen (Academic Press, New York, 1985)
- [3] K.Ploog and G.H.Dohler, Advances in Physics 32, 285 (1983)
- [4] I.K.Schuller, Phys. Rev. Lett. 44, 1597 (1980)
- [5] I.K.Schuller and C.M.Falco, Surf. Sci. 113, 443 (1982)
- [6] D.B.Mcwhan, Structure of Chemically Modulated Films, in Synthetic Modulated Structures, edited by L.L.Chang and B.C.Giessen (Academic Press, New York, 1985)
- [7] N.B.Ming, J.F.Hong and D.Feng, J. Mater. Sci. 17, 1663 (1982)

- [8] F.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing and P. S. Pershan, Phys. Rev. 127, 1918(1962)
- [9] E.J.Lim, M.M.Fejer, R.L.Byer and W.J.Kozlowsky, Electron. Lett.25, 731(1989)
- [10] G.D.Miller, R.G.Batchko, W.M.Tulloch, D.R.Weise, M.M.Fejer, and R.L.Byer, Optics Letters 22(24) 1997
- [11] Kiminori Mizuuchi, Kazuhisz Yamamoto and Makoto Kato Appl. Phys. Lett. 70(10) 1997
- [12] K.Kawase, M.Sato, K.Nakamura, T.Taniuchi and H.Ito, Appl.Phys.Lett. 71, 753(1997)
- [13] B.B.Hu, and M.C.Nuss, Opt. Lett., 20, 1761(1995)
- [14] Y.Y.Zhu, N.B.Ming, W.H.Jiang and Y.A.Shui Appl. Phys. Lett 53, 1381(1988)
- [15] Y.F.Chen, S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, and N.B.Ming Appl. Phys. Lett 70(5), 592(1997)
- [16] Steinhardt P. J and Ostlund S, The Physics of Quasicrystals, World Scientific, Singapore, (1987)
- [17] Janot C, Quasicrystals, Claredon Press, Oxford, (1992)
- [18] Merlin R, Bajema, K and Clarke R, Phys. Rev. Lett. 55, 1768 (1985)
- [19] Gellermann W, Kohmoto M, Sutherland B and Taylor P.C, Phys. Rev. Lett. 72, 633 (1994)
- [20] Hu A, etal. Phys. Lett. A 119, 313(1986)
- [21] Zhu Y Y and Ming N B, Phys. Rev. B 42, 3676 (1990)
- [22] Feng J, Zhu Y Y and Ming N B, Phys. Rev. B 41, 5578 (1990)
- [23] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming, Science 278, 843(1997)
- [24] R.Schiek Nonlinear Optics Vol. 18 of 1992 OSA Technical Digest Series, Paper TuD7
- [25] R.Desalvo, D.J.Hagan, M.S.Bahae and G.I.Stegeman, Opt. Lett.17 28 (1992)
- [26] G.I.Stegeman, M.S.Bahae, E.Van. Stryland and G. Assanto, Opt. Lett.18 13(1993)
- [27] S.Gatz and J.Hermann, IEEE J. Quantum. Electron.28, 1732 (1992)
- [28] R.Schiel, Opt. Quantum Electron 26, 415(1994)
- [29] K.Hayata and M.Koshiba, Phys. Rev. Lett. 71 3275(1993)
- [30] L.Torner, C.R.Menyuk and G.I.Stegeman, J.Opt.Soc.Am.B 12 889 (1995)
- [31] H.J.Bakker, P.C.M.Planken, L.Kuipers and A. Lagendijk, Phys. Rev. A 42 4085(1990)

第二章 室温极化技术及光学超晶格的制备

$\text{LiNbO}_3(\text{LN})$ 、 $\text{LiTaO}_3(\text{LT})$ 是两种传统的已广泛应用的非线性光学材料,具有良好的压电、电光性质,并有较大的非线性光学系数。但对于传统的双折射位相匹配技术,LT由于双折射效应小于色散效应而无法补偿波矢失配, LN也只能在基波波长大于 $1\mu\text{m}$ 的情况下满足位相匹配条件,无法获得短波长的二次谐波输出。且因为参与作用的光波要处于不同的偏振态,最大的非线性系数 d_{33} 无法得到应用,这些因素制约了LN、LT晶体在激光频率转移领域的应用。利用超晶格结构提供的倒格矢来匹配波矢失配,即准位相匹配技术,可以弥补LN、LT在双折射位相匹配技术方面的不足。随着人工调制介电体超晶格的出现,特别是具有周期调制铁电畴结构的LN、LT光学超晶格将准位相匹配技术应用于激光频率转移领域获得成功,制备光学超晶格的新方法及相应的倍频特性研究已达到了空前热门的程度,光学超晶格LN、LT已成为公认的一种新型优秀的人工微结构功能材料。

2-1 脉冲电场室温极化技术

LN、LT光学超晶格可以在体块材料中实现也可以在波导中实现。目前制备LN、LT光学超晶格的方法主要包括Czochralski生长法^{[1][2]}、激光基座法^[3]、电子束扫描法^[4]、杂质离子扩散方法^{[5][6]}以及室温外电场极化法^{[7][9]},实践表明,室温脉冲电场极化法是一种十分有效的制备光学超晶格的方法,特别是在制备各种图案及分形超晶格方面有十分重要的应用价值。

图2-1是脉冲电场实现铁电畴反转的装置示意图。脉冲发生器提供高压($< 30\text{kv}$)脉冲电场,其脉冲宽度可以通过自动或手动控制在 $\text{ms}\sim\text{s}$ 之间调节, R_s 为一串联的保护电阻($20\text{M}\Omega\sim 100\text{M}\Omega$), R_0 为取样电阻,通过显示 R_0 上的电压演变观察样品的极化反转过程,图2-2是示波器上显示的极化电流波形,示波器为Kenwood公司生产的CS-8010数字存储示波器。

LN、LT同属于 ABO_3 结构^[10],顺电相和铁电相的空间群分别为 $R\bar{3}C$ 和 $R3C$,但LN、LT分别具有不同的居里温度(LT: 630°C ; LN: 1210°C)和自发极化强度(LT: $0.50\text{C}/\text{m}^2$; LN: $0.75\text{C}/\text{m}^2$)。由此也造成了室温极化特性的差异,特别是极化样品所使用的电极对铁电畴的反转质量具有重要的影响。

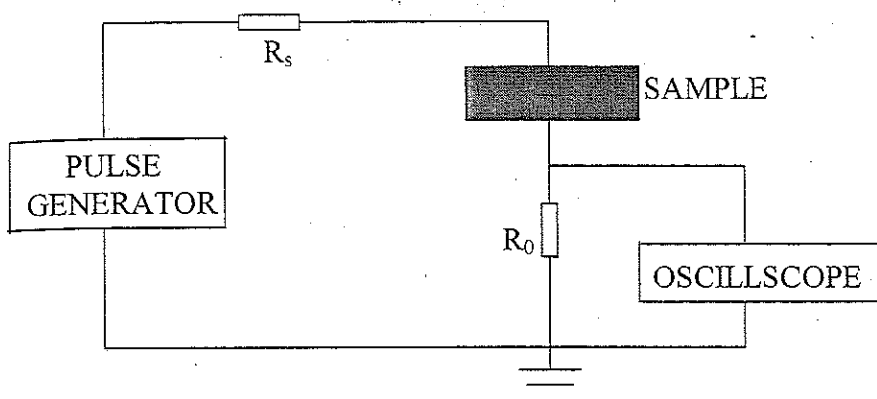


图 2--1 室温外电场极化装置示意图

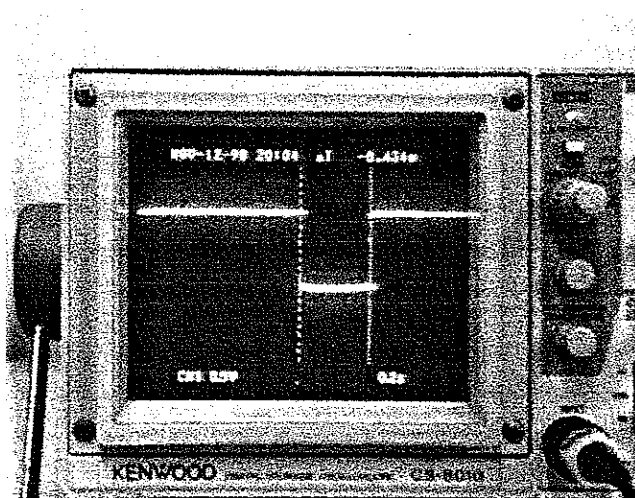


图 2--2 示波器显示的极化反转电流波形

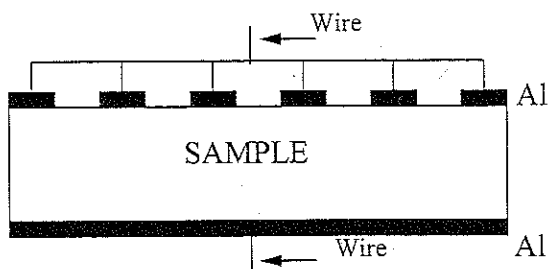


图 2--3 金属电极设置示意图

图 2--3 是使用金属电极极化设置的示意图。样品加工成薄片状，C 切，光刻镀膜前使用标准方法清洗，将周期或准周期电极图案刻蚀在 +C 面，-C 面

为平面电极。通常用铝、金、铬、钛作为电极的金属材料，电极厚度60nm~200nm，样品浸泡在盛有高压油的容器中以防漏电。

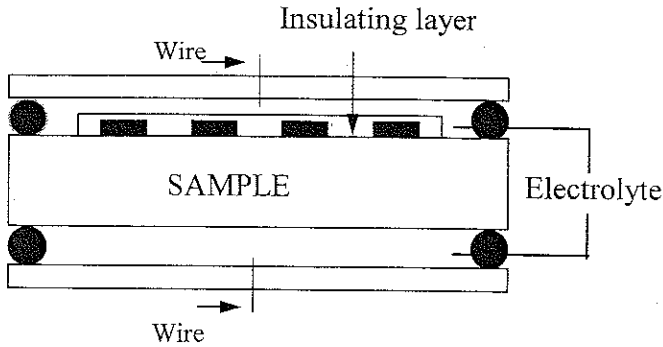


图2-4 液体电极设置示意图

图2-4是使用液体电极极化设置的示意图。样品加工与清洗方法与金属电极极化相同。周期或准周期金属电极图案仍刻蚀在+C面上并用光刻胶保护，用LiCl溶液作为液体电极。对于LN的极化一般采用液体电极极化方法。

2-2 LiTaO₃ 晶体室温极化特性的研究

LN、LT晶体的室温极化特性文献已作了详细报道^{[9],[11]-[12]}，本章将介绍我们新近观察到的实验结果及初步的理论分析。

样品极化时，脉冲电源的正极接样品+C面电极，样品的-C面电极接地。完全极化可以采用一个单脉冲一次完成，也可以采用若干个短脉冲分数次完成。脉冲电源可以分别提供正负脉冲用于样品极化，极化过程中的极化电流的大小可以通过取样电阻由示波器显示。极化电流的出现实质上是电源输送电荷到样品表面以中和原有屏蔽电荷并为反向极化提供屏蔽电荷，提供的电荷总量 $Q = \int i dt = 2P_s A$ 其中 P_s 是自发极化， A 是铁电畴反转区的面积。通过控制极化电流的持续时间，即脉冲的宽度，可以控制流至样品的电荷总量 Q ，从而控制铁电畴反转的面积 A ，实现晶体自发极化的部分或全部反转。也可以改变脉冲极性对样品进行反复极化。我们发现LN、LT反向极化的矫顽场要远低于正向矫顽场，这表明在LT、LN中存在着内偏置场 ΔP ，正向极化 $P_0 = P_1 - \Delta P$ ，反向极化 $P_0 = P_2 + \Delta P$ 。可以通过 $2\Delta P = P_1 - P_2$ 估计出 ΔP 的大小。一般认为 ΔP 的起源是晶体中的自

然缺陷, 我们将自发极化矢量从正C轴反转到负C轴的过程定义为正向极化, 自发极化矢量从负C轴反转到正C轴的过程定义为反向极化, 实验还发现LN、LT第二次正向极化时其正向矫顽场略低于最初的正向矫顽场, 表明当晶体极性被外场反向时, 缺陷引起的 ΔP 可能部分反向, 可能不反向。且多次反向极化容易引起 ΔP 的反向, ΔP 反向的几率正比于正向、反向极化之间的时间间隔。

极化样品时, 通常是根据铁电畴反转区域的面积来确定极化时流至样品的电荷总量 Q , 我们研究了极化样品的电荷开关量与样品的实际极化反转量之间的关系。结果发现, 按 $Q = \int i dt = 2P_s A$ 确定的极化电流持续时间(即脉冲宽度)不能在刻蚀电极的区域实现有效的铁电畴反转。造成这种现象主要有两个原因: 首先, 对于若干个短脉冲的数次反转, 每次短脉冲对应的少量极性反转在电场撤去后仍可能恢复到初始的状态^[13]。其次, 极化过程可分为反向畴的成核和生长两个阶段, 而反向畴的生长包括纵向和横向两个过程, 也就是说, 反向畴不仅在+C面与-C面之间纵向生长, 也同样在+C面周期或准周期电极之间横向生长。考虑到以下因素, 为了实现在刻蚀电极区域的完整极化, 流至样品的电荷总量公式应该修正为

$$Q = \int i dt = 2P_s (A + kA + 2nLW) \quad (2-1)$$

Q 的修正项共包括两项: $2kP_s A$ 是对少量极性反转在电场撤去后仍恢复到初始状态的修正, 系数 k 正比于完成极化反转所用的极化脉冲的数目。 $2nP_s LW$ 是对极化过程中铁电畴横向生长的修正, n 为+C面电极的数目, L 是每一电极的长度, W 是单位长度铁电畴的横向扩展量。实验中发现随着样品厚度的增加, 电荷总量也相应增加, 说明横向扩展量 W 是随着样品厚度而增加的。公式 $W = 0.0027d - 0.21(\mu\text{m})$ ^[12]给出横向扩展量对样品厚度 d 的依赖关系。

我们可以从具体参数的样品极化来了解反向畴的横向生长对电荷总量 Q 的影响。图2-5是实验中使用的标有具体参数的模板。表2-1列出了根据公式(1)计算的横向扩展引起的极化电量对周期 Λ 、电极数目 n 的依赖关系。由此看出: 在相同的实验条件下, 对于周期较小的极化样品, n 值增大, $2nLW/A$ 也明显增大, 横向扩展的作用越来越明显。在小周期样品极化中容易形成电极之间的“连条”, 其原因就在于此。

图2-6是实验中对应于各种不同的极化反转电荷总量条件下极化样品的光学显微照片, 我们定义整个图案区域全部反转所需的反转电荷总量

为 Q ，则刻蚀电极部分实现有效的铁电畴极化反转所需的极化电荷总量为 $0.7Q$ 。若考虑极化的横向生长，当周期超晶格的周期等于 $20\mu\text{m}$ 时，所需的极化反转电荷总量为 $0.3 \times 1.24Q + 0.4Q = 0.78Q$ 。这一结果与我们的实验结果吻合得较好，图2--6(d)对应的极化反转电荷总量为 $0.8Q$ ，在整个图案区域实现了有效的周期性电畴反转。当极化反转电量低于该值时，极化反转只发生在部分区域。图2--6(a)、(b)、(c)分别对应于极化反转电荷为 $0.5Q$ 、 $0.6Q$ 、 $0.7Q$ 条件下极化样品腐蚀后光学显微照片。

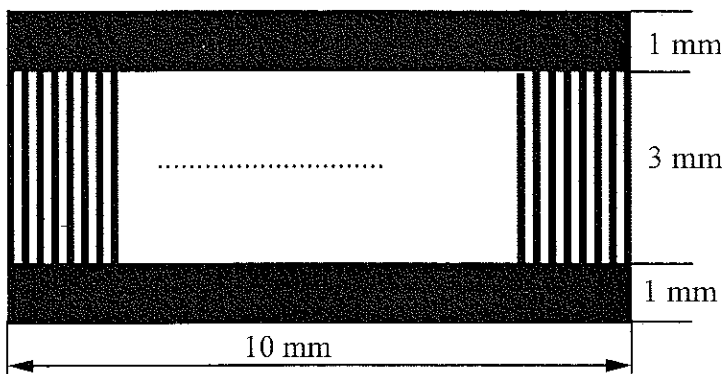


图 2--5 实验用周期电极模板

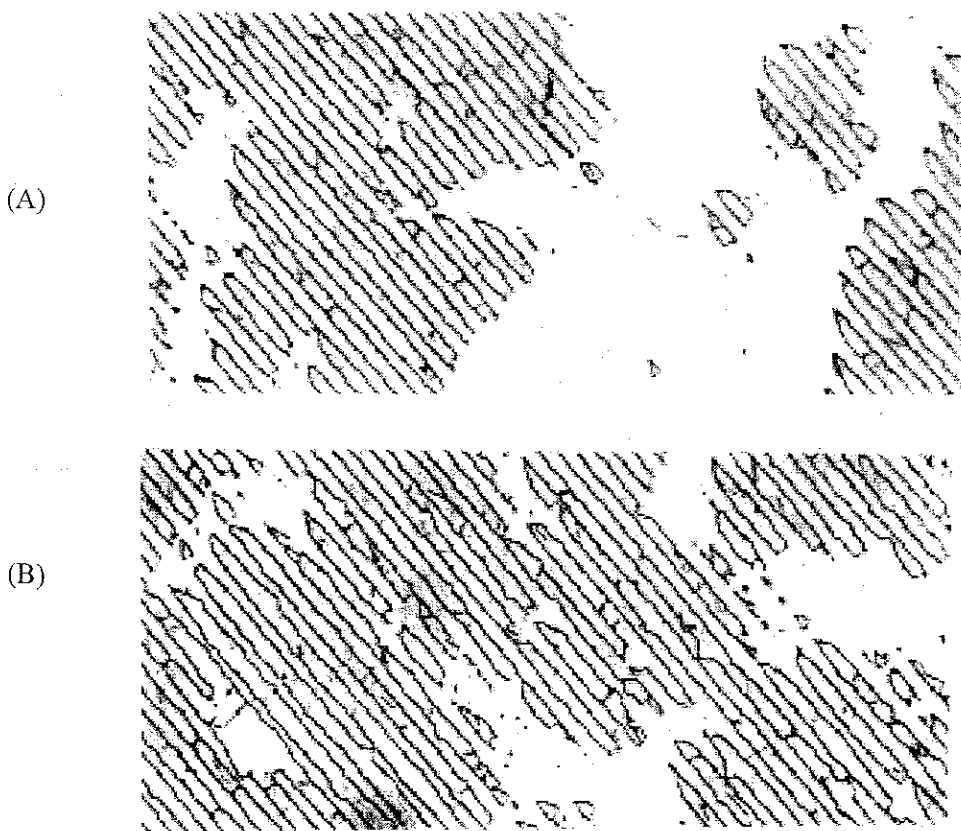


表2-1 反向畴的横向生长与结构参数的依赖关系。

Λ	n	$2nLW$	$2nLw/A$
50 μm	200	$1.44 \times 10^{-6} \text{m}^2$	9.6 %
20 μm	500	$0.36 \times 10^{-5} \text{m}^2$	24 %
12.5 μm	800	$0.576 \times 10^{-5} \text{m}^2$	38.4 %
10 μm	1000	$0.72 \times 10^{-5} \text{m}^2$	48 %

$A=1.5 \times 10^{-5} \text{m}^2$ $W=1.2 \mu\text{m}$ $L=3 \text{mm}$ $d=0.5 \text{mm}$

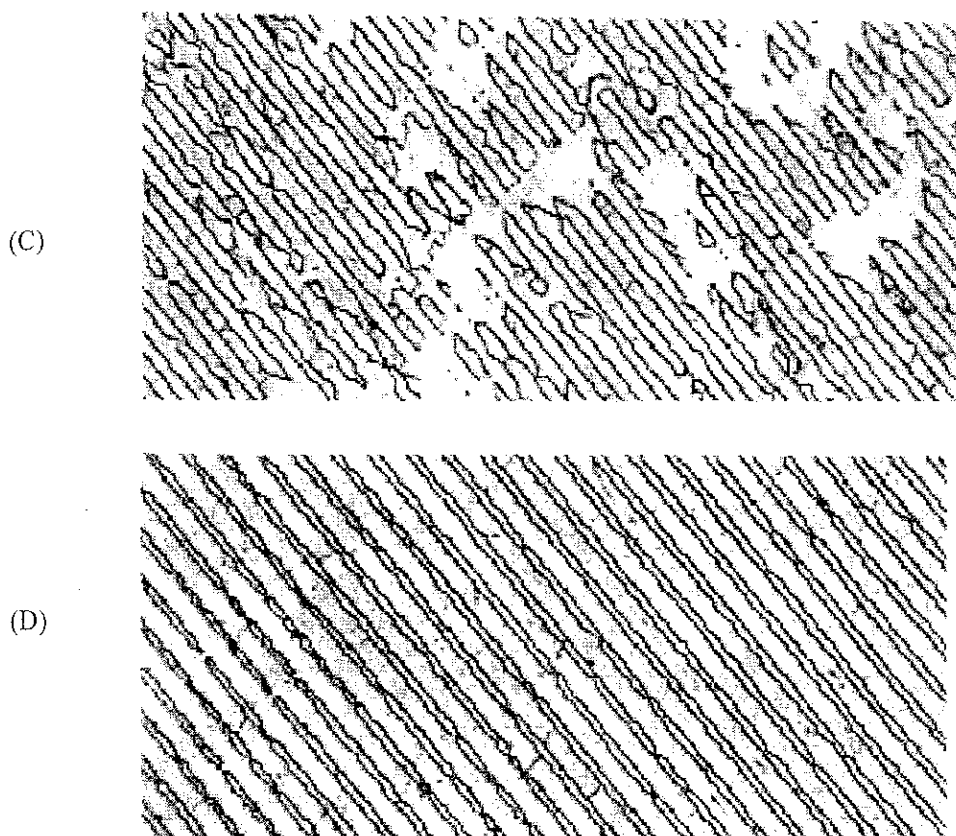


图2-6 各种极化反转电荷总量条件下极化样品腐蚀后的光学显微照片。
其极化反转电荷总量分别为(a) 0.5Q; (b) 0.6Q; (c) 0.7Q; (d) 0.8Q

参考文献:

[1] N.B.Ming, J.F.Hong and D.Feng, J.Mater. Sci 17, 1663(1982)
 [2] Y.L.Lu, L.Mao and N.B.Ming, Opt. Lett 19, 1037(1994)
 [3] G.A.Magel, M.M.Fejer and R.L.Byer, Appl. Phys. Lett 56, 108(1990)

- [4] H.Ito,C.Takyu and H.Inaba, Electron. Lett. 27, 1221(1991)
- [5] J.Webjorn, F.Laurell and G.Arvidsson, J. Lightwave Technol, 7, 1579(1989)
- [6] E.J.Lim, M.M.Fejer and R.L.Beyer, Electron. Lett. 25 174(1995)
- [7] M.Yamada, N.Nada, et.al., Appl. Phys. Lett. 62, 435 (1993)
- [8] L.E.Myers, M.M.Fejer et al. , Opt. Lett. 20, 52(1995)
- [9] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming, J.Appl. Phys. 72, 5481(1995)
- [10] S.C.Abrahams et al., J. Phys. and Chem. of Solids 28, 1685 (1967)
- [11] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, H.F.Wang et al, J. Phys. D: Appl. Phys. 29, 76(1996)
- [12] K. Mizuuchi, K.Yamamoto and M. Kato, Appl. Phys. Lett. 70, 1201(1997)
- [13] S.Chao, W.Davis, D.D.Tuschei, et.al. Appl. Phys. Lett. 67,(8) 21(1995)

第三章 基波衰减及位相失配条件下的 激光变频效应研究

光波在介质中的传播满足传统的 Maxwell 方程组。本章从 Maxwell 方程组出发, 导出了周期和准周期光学超晶格中激光变频的耦合波动方程, 在此基础上研究了位相失配及考虑基波衰减情况下的激光变频效应, 并与传统的小信号近似方法进行了比较。

3-1 基波、二次、三次谐波的振幅耦合方程

从介质中的 Maxwell 方程组出发, 很容易得到介质中的耦合波动方程:

$$\nabla^2 \bar{E} = \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \bar{P}}{\partial t^2} \quad \bar{P} = \bar{P}_L + \bar{P}_{NL} \quad (3-1)$$

$$\text{或 } \nabla^2 \bar{E} = \mu_0 \varepsilon_r \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \bar{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad \varepsilon_r = 1 + \chi_1$$

设基波及各次谐波均为平面波, 耦合波动方程可简化为一维的情况, 若平面波沿 x 轴方向传播, 在缓变振幅近似下(即舍去振幅的二阶微分项), 考虑基波、二次谐波、三次谐波之间 $1+1 \leftrightarrow 2$, $1+2 \leftrightarrow 3$ 的能量耦合过程, 可以得到下列波动耦合方程^[1]:

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dx} = -i \frac{\omega_1 d(x)}{n_1 c} [E_3 E_2^* e^{-i\Delta k_2 x} + E_2 E_1^* e^{-i\Delta k_1 x}] \\ \frac{dE_2}{dx} = -i \frac{\omega_2 d(x)}{n_2 c} [E_3 E_1^* e^{-i\Delta k_2 x} + \frac{1}{2} E_1^2 e^{i\Delta k_1 x}] \\ \frac{dE_3}{dx} = -i \frac{\omega_3 d(x)}{n_3 c} [E_1 E_2 e^{i\Delta k_2 x}] \end{cases} \quad (3-2)$$

$$\text{其中 } \begin{cases} \Delta k_1 = k_2 - 2k_1 \\ \Delta k_2 = k_3 - k_2 - k_1 \end{cases}$$

$\omega_j = j\omega_1$ 为 j 次谐波的频率, n_j 为 j 次谐波的折射率, c 为真空中的光速, k_j 为 j 次谐波的波矢。

定义新的场变量: $A_j = \sqrt{\frac{n_j}{\omega_j}} E_j$, $j = 1, 2, 3$.

频率为 ω_j 的光场强度:

$$I_j = \frac{P_j}{S} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \omega_j |A_j|^2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} n_j |E_j|^2 \quad (3-3)$$

式中 P_j 为 ω_j 的功率, S 为光斑面积。用场变量 A_j 可以直接表示能量转换效率:

$$\eta_j = j |A_j|^2 / |A_1(0)|^2,$$

$A_1(0)$ 为基波刚射入晶体时对应的场变量。式 (3-2) 可改写成:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = -iK_2 A_3 A_2^* e^{-i\Delta k_2 x} - iK_1 A_2 A_1^* e^{-i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_2}{dx} = -iK_2 A_3 A_1^* e^{-i\Delta k_2 x} - \frac{i}{2} K_1 A_1^2 e^{i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_3}{dx} = -iK_2 A_1 A_2 e^{i\Delta k_2 x} \end{cases} \quad (3-4)$$

$$K_2 = \frac{d(x)}{c} \sqrt{\frac{\omega_3 \omega_2 \omega_1}{n_3 n_2 n_1}}$$

$$K_1 = \frac{d(x)}{c} \sqrt{\frac{\omega_2 \omega_1^2}{n_2 n_1^2}}$$

由方程(3-4)容易得到:

$$\frac{d}{dx} (|A_1|^2 + 2|A_2|^2 + 3|A_3|^2) = 0 \quad (3-5)$$

满足变频过程中总能量守恒。

根据方程 (3-4) 可以讨论周期和准周期光学超晶格中基波及各次谐波的变化规律。很显然, 波矢失配 Δk_1 、 Δk_2 对二次和三次谐波的有效输出至关重要。当 Δk_1 、 Δk_2 同时得到匹配时, 才能够获得二次和三次谐波的有效输出。

对于周期或准周期的光学超晶格, 二级非线性光学系数(三阶张量) $d(x)$ 与超晶格的正负畴结构有关。即 $d(x) = d \times f(x)$, $f(x)$ 是空间调制函数, 与超晶格的正负畴结构有关。若 x 处为正畴则 $f(x)$ 取+1, 负畴则取-1。对 $f(x)$ 进行 Fourier 展开, 可得:

$$f(x) = \sum_n g_n e^{-iG_n x} \quad \text{或} \quad f(x) = \sum_{m,n} g_{m,n} e^{-iG_{m,n} x}$$

其中, G_n 和 $G_{m,n}$ 表示超晶格的倒格矢的位置, g_n 和 $g_{m,n}$ 表示规一化后倒格矢峰 G_n ($G_{m,n}$) 的高度。二级非线性光学系数(三阶张量) $d(x)$ 可以表示为:

$$d(x) = d \sum_n g_n e^{-iG_n x} \quad \text{或} \quad d(x) = d \sum_{m,n} g_{m,n} e^{-iG_{m,n} x} \quad (3-6)$$

该结构的有效非线性光学系数定义为 $d_n = d \times g_n$ 或 $d_{m,n} = d \times g_{m,n}$ 。我们可以根据准位相匹配原理, 利用倒格矢 G_n ($G_{m,n}$) 来补偿二次、三次谐波产生过程中的波矢失配因子 Δk_1 、 Δk_2 , 以实现二次及三次谐波的有效输出。

当倒格矢 G_n ($G_{m,n}$) 和 $G_{n'}$ ($G_{m',n'}$) 满足或基本满足二次、三次谐波产生过程中的位相失配时, 只需要考虑这两个主要的倒格矢过程, 方程(3-4)可以改写成:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_2^* e^{-i\Delta k_2' x} - i\kappa_1 A_2 A_1^* e^{-i\Delta k_1' x} \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* e^{-i\Delta k_2' x} - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 e^{i\Delta k_1' x} \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 e^{i\Delta k_2' x} \end{cases} \quad (3-7)$$

其中

$$\kappa_1 = \frac{d_m(d_{m,n})}{c} \sqrt{\frac{\omega_2 \omega_1^2}{n_2 n_1^2}}$$

$$\kappa_2 = \frac{d_n(d_{m',n'})}{c} \sqrt{\frac{\omega_3 \omega_2 \omega_1}{n_3 n_2 n_1}}$$

$$\Delta k_1' = k^{2\omega} - 2k^\omega - G_{m,n}$$

$$\Delta k_2' = k^{3\omega} - k^{2\omega} - k^\omega - G_{m',n'}$$

方程组(3-7)构成了我们讨论小信号近似和考虑基波衰减条件下激光变频效应的基础。

3-2 小信号近似条件下的各次谐波转换效率

当二次、三次谐波的转换效率比较低时, 即晶体的有效长度较短时, 可以认为基波光强保持不变, 即所谓小信号近似。这种情况下, 方程(3-7)可以改写成:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = 0 \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* e^{-i\Delta k_2 x} - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 e^{i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 e^{i\Delta k_2 x} \end{cases} \quad (3-8)$$

方程(3-8)可求得解析表达式:

$$\begin{aligned} A_2 = & -\frac{\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\kappa_2 A_1} C_1 \exp[-i\frac{1}{2}(\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ & -\frac{\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\kappa_2 A_1} C_2 \exp[-i\frac{1}{2}(\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ & -\frac{(\kappa_1 A_1^2 \Delta k_3 / 2)}{\Delta k_1 \Delta k_3 - \kappa_2^2 A_1^2} \exp(i\Delta k_1 L) \\ A_3 = & C_1 \exp[i\frac{1}{2}(\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] + C_2 \exp[i\frac{1}{2}(\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ & + \frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2)}{\Delta k_1 \Delta k_3 - \kappa_2^2 A_1^2} \exp(i\Delta k_3 L) \end{aligned} \quad (3-9)$$

$$\begin{aligned} C_1 = & -\frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2)}{\Delta k_1 \Delta k_3 - \kappa_2^2 A_1^2} \frac{\Delta k_1 + \Delta k_3 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}} \\ C_2 = & \frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2)}{\Delta k_1 \Delta k_3 - \kappa_2^2 A_1^2} \frac{\Delta k_1 + \Delta k_3 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}} \end{aligned}$$

其中 $\Delta k_3 = \Delta k_2 + \Delta k_1$,

$$\Delta k_1 = k^{2\omega} - 2k^\omega - G_{m,n}$$

$$\Delta k_2 = k^{3\omega} - k^{2\omega} - k^\omega - G_{m',n'}$$

L为超晶格晶体的总长度。

这时的转换效率可表示为: $\eta_1 = \frac{|A_1|^2}{|A_1(0)|^2}, \quad \eta_2 = \frac{2|A_2|^2}{|A_1(0)|^2}, \quad \eta_3 = \frac{3|A_3|^2}{|A_1(0)|^2}.$

当倍频过程满足准位相匹配, 而和频过程准位相失配, 即 $\Delta k_1 = 0, \Delta k_2 \neq 0$, 解析表达式可简化为:

$$A_2 = -\frac{\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\kappa_2 A_1} C_1 \exp[-i\frac{1}{2}(\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ - \frac{\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{2\kappa_2 A_1} C_2 \exp[-i\frac{1}{2}(\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ + \frac{(\kappa_1 \Delta k_2 / 2)}{\kappa_2^2}$$

$$A_3 = C_1 \exp[i\frac{1}{2}(\Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] + C_2 \exp[i\frac{1}{2}(\Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2})L] \\ - \frac{(\kappa_1 A_1 / 2)}{\kappa_2} \exp(i\Delta k_2 L)$$

$$C_1 = -\frac{(\kappa_1 A_1 / 2) \Delta k_2 + \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{\kappa_2 \cdot 2\sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}$$

$$C_2 = \frac{(\kappa_1 A_1 / 2) \Delta k_2 - \sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}{\kappa_2 \cdot 2\sqrt{\Delta k_2^2 + 4\kappa_2^2 A_1^2}}$$

可以定义变量将上式简化:

$$A_2 = -[B + \sqrt{1+B^2}] C_1 \exp[-i(B - \sqrt{1+B^2})X] \\ - [B - \sqrt{1+B^2}] C_2 \exp[-i(B + \sqrt{1+B^2})X] + \alpha B$$

$$A_3 = C_1 \exp[i(B + \sqrt{1+B^2})X] + C_2 \exp[i(B - \sqrt{1+B^2})X] - \frac{\alpha}{2} \exp(2iBX)$$

$$C_1 = \frac{\alpha B + \sqrt{1+B^2}}{2 \cdot 2\sqrt{1+B^2}}$$

$$C_2 = -\frac{\alpha B - \sqrt{1+B^2}}{2 \cdot 2\sqrt{1+B^2}}$$

其中 $\alpha = (\kappa_1/\kappa_2)A_1$

$B = \Delta k_2 / (2\kappa_2 A_1)$

$X = \kappa_2 A_1 L$

对应的二次谐波及三次谐波转换效率如图3-1所示。

当倍频过程准位相失配, 而和频过程满足准位相匹配, 即 $\Delta k_1 \neq 0$, $\Delta k_2 = 0$,

解析表达式可简化为:

$$A_2 = -C_1 \exp[i\kappa_2 A_1 L] + C_2 \exp[-i\kappa_2 A_1 L] - \frac{(\kappa_1 A_1^2 \Delta k_1 / 2)}{(\Delta k_1)^2 - \kappa_2^2 A_1^2} \exp(i\Delta k_1 L)$$

$$A_3 = C_1 \exp[i\kappa_2 A_1 L] + C_2 \exp[-i\kappa_2 A_1 L] + \frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2)}{(\Delta k_1)^2 - \kappa_2^2 A_1^2} \exp(i\Delta k_1 L)$$

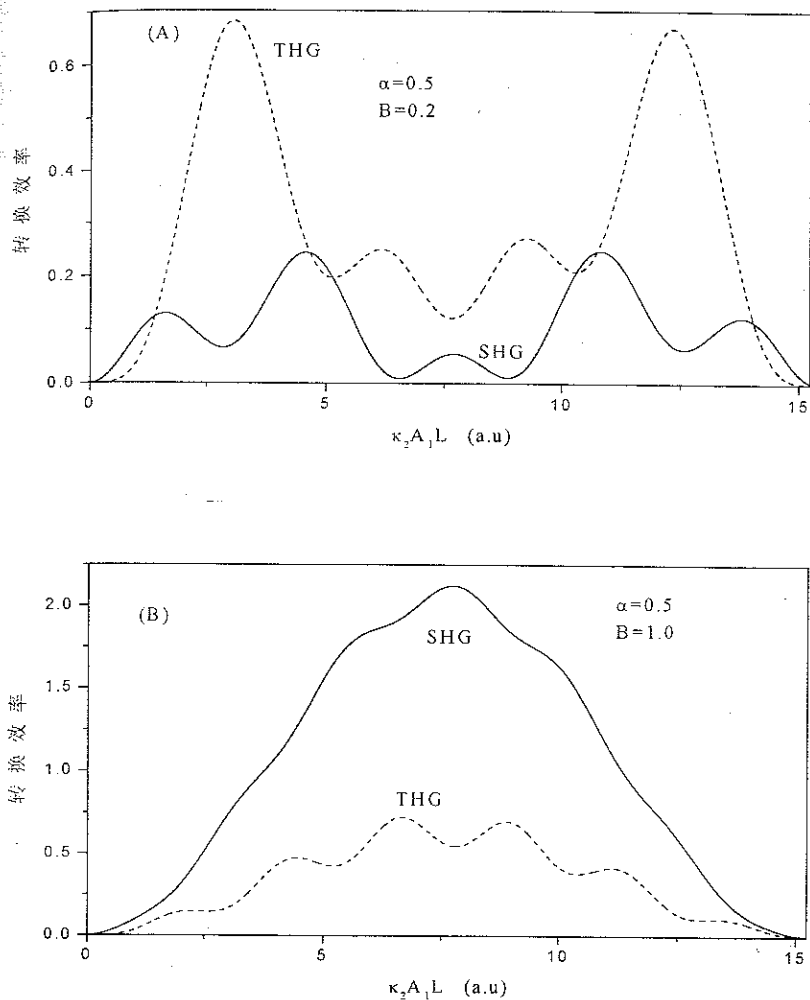


图3-1 小信号近似条件下倍频准位相匹配、和频位相失配的转换效率(a) 对应于较小的和频位相失配 (b)对应于较大的和频位相失配

$$C_1 = -\frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2) \Delta k_1 + \kappa_2 A_1}{(\Delta k_1)^2 - \kappa_2^2 A_1^2} \frac{1}{2\kappa_2 A_1}$$

$$C_2 = \frac{(\kappa_1 \kappa_2 A_1^3 / 2) \Delta k_1 - \kappa_2 A_1}{(\Delta k_1)^2 - \kappa_2^2 A_1^2} \frac{1}{2\kappa_2 A_1}$$

可以定义变量将上式简化:

$$A_2 = -C_1 \exp(iX) + C_2 \exp(-iX) - \alpha \frac{B}{4B^2 - 1} \exp(2iBX)$$

$$A_3 = C_1 \exp(iX) + C_2 \exp(-iX) + \frac{\alpha}{2} \frac{1}{4B^2 - 1} \exp(2iBX)$$

$$C_1 = -\frac{\alpha}{4} \frac{1}{2B - 1}$$

$$C_2 = \frac{\alpha}{4} \frac{1}{2B + 1}$$

其中 $\alpha = (\kappa_1/\kappa_2)A_1$

$B = \Delta k_1/(2\kappa_2 A_1)$, $X = \kappa_2 A_1 L$

对应的二次谐波及三次谐波转换效率如图 3-2 所示。

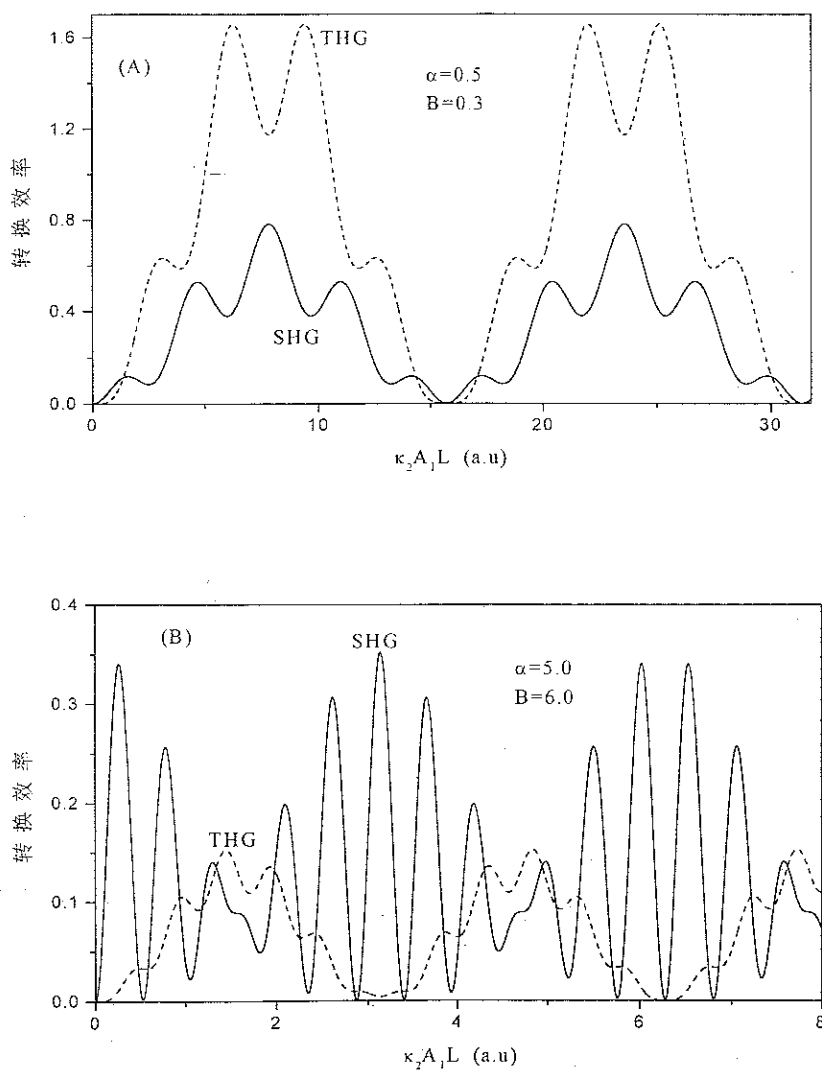


图 3-2 小信号近似条件下倍频位相失配、和频准位相匹配的转换效率
(a) 对应于较小的倍频位相失配 (b) 对应于较大的倍频位相失配

当倍频过程及和频过程均满足准位相匹配, 即: $\Delta k_1=0, \Delta k_2=0$, 其解析式可以进一步简化:

$$A_2 = -C_1 \exp[i\kappa_2 A_1 L] + C_2 \exp[-i\kappa_2 A_1 L]$$

$$A_3 = C_1 \exp[i\kappa_2 A_1 L] + C_2 \exp[-i\kappa_2 A_1 L] - \frac{(\kappa_1 A_1 / 2)}{\kappa_2}$$

$$C_1 = C_2 = -\frac{\kappa_1 A_1}{4\kappa_2}$$

可以得到对应的转换效率:

$$\eta_2 = 2\left(\frac{\kappa_1}{2\kappa_2}\right)^2 \sin^2(\kappa_2 A_1(0)L)$$

$$\eta_3 = 3\left(\frac{\kappa_1}{2\kappa_2}\right)^2 \left[\cos(\kappa_2 A_1(0)L) - 1 \right]^2 \tag{3-10}$$

如图3-3所示。这一结果与方程(3-8)直接令 $\Delta k_1'=0$ 和 $\Delta k_2'=0$ 的积分结果是完全一致的。对应于倍频及和频过程同时满足准位相匹配。

当 $\kappa_2 A_1(0)L \ll 1$ 时, 方程(3-10)可以进一步简化为^[2]:

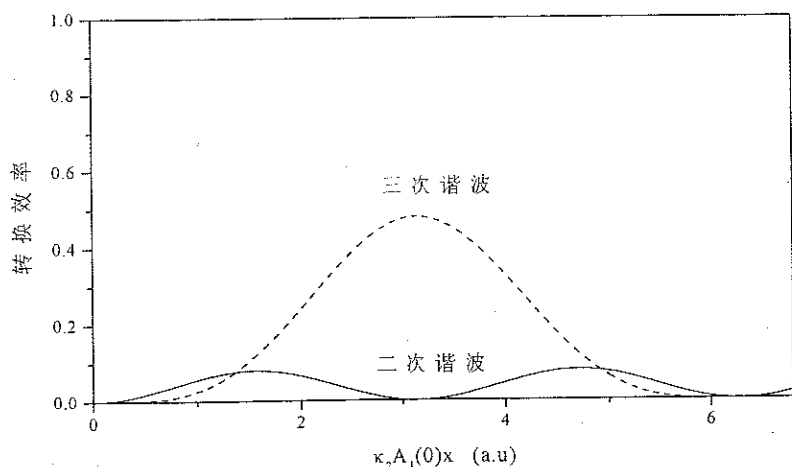


图3-3 小信号近似条件下同时满足倍频及和频准位相匹配的转换效率

$$\eta_2 = 2\left(\frac{\kappa_1}{2\kappa_2}\right)^2 (\kappa_2 A_1(0)L)^2$$

$$\eta_3 = \frac{3}{4} \left(\frac{\kappa_1}{2\kappa_2} \right)^2 (\kappa_2 A_1(0)L)^4$$

当 $\kappa_2 A_1(0)L = (8/3)^{1/2}$ 时, 二次谐波与三次谐波的转换效率相等。这一特征从图3-3 可以看出。

比较图3-1、图3-2、图3-3, 可以得到以下结论:

(1) 当倍频满足准位相匹配、和频位相失配时, 二次谐波及三次谐波的转换效率基本上呈周期振荡。其振荡周期均受到和频位相失配量的强烈影响, 当位相失配量增加时, 三次谐波的振荡加剧, 三次谐波对二次谐波的耦合减小, 二次谐波的振荡周期增大, 二次谐波在超晶格内持续增长的距离增加。随着位相失配量的减小, 三次谐波对二次谐波的耦合增加, 对二次谐波的增长产生制约作用, 当和频也满足位相匹配时, 三次谐波对二次谐波的耦合达到最大值, 二次谐波的振荡周期最小。(图3-3)

(2) 当和频满足准位相匹配、倍频位相失配时, 二次谐波及三次谐波的转换效率基本上呈变周期的周期振荡。当倍频位相失配量增加时, 二次谐波的振荡明显加剧, 二次谐波和三次谐波的振荡周期减小, 三次谐波则以台阶形式增长^[3]。

(3) 参数 α 代表了耦合系数的比值, 主要对振荡的振幅产生影响, 对振荡的周期基本上不产生影响。也就是说, 小信号近似条件下的转换效率依赖于耦合系数的比值 κ_1/κ_2 , 小信号近似在 κ_1/κ_2 达到一定的数值时, 出现转换效率大于100%的反常情况。这一现象也可以从完全匹配条件下的方程(3-10)看出, 当 $\kappa_1/\kappa_2 < (4/3)^{1/2}$ 时, 可以避免出现这种反常情况。在这种情况下, 我们可以对小信号近似结果作适当修正, 以避免出现转换效率大于100%的情况。其结果与基波衰减的数值计算结果非常接近^[4]。另一方面, 在小信号近似的条件下, 由于基波是不考虑衰减的, 可源源不断地提供基波能量用于产生二次谐波和三次谐波。按照能量的观点, 二次谐波及三次谐波的能量会一直增加, 但计算结果显示二次谐波、三次谐波转换效率呈周期性振荡, 这是由于二次谐波与三次谐波振幅在方程中互相耦合, 自我限制而造成的。其耦合程度取决于和频过程的位相失配量。

3-3 考虑基波衰减条件下的各次谐波转换效率

当二次、三次谐波的转换效率较大时，或者超晶格晶体的长度足够长时，小信号近似已经不再满足，此时，必须考虑基波的衰减。我们应该直接从方程(3-7)作数值计算。若为了简单起见，可以考虑倍频、和频完全位相匹配的情况：

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_2^* - i\kappa_1 A_2 A_1^* \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* - \frac{1}{2} i\kappa_1 A_1^2 \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 \end{cases} \quad (3-11)$$

图3-4--图3-6是方程(3-11)的数值计算结果，比较图3-3--图3-6，二次谐波及三次谐波的转换效率与耦合系数 κ_1 、 κ_2 的比值有密切关系。小信号近似方法对于光学超晶格的长度比较短时是完全能够适用的，尤其是对应于 $\kappa_1: \kappa_2 < 8:9$ 的情况^[4]，小信号方法是很好的近似。

从物理的角度来看，三次谐波的最佳转换效率要求基波与二次谐波的转换效率有一个适当的比例。可以从下面的具体实例来说明这一物理概念。图3-7是用两块晶体产生三次谐波的示意图。第一块晶体满足倍频过程的准位相匹配，第二块晶体满足和频过程的准位相匹配，基波经过第一块晶体后，有基波和二次谐波同时存在，基波和二次谐波经过第二块晶体后，产生三次谐波，若第二块晶体足够长使得基波和二次谐波充分实现和频过程，一般情况下，输出光强中包含基波、二次谐波和三次谐波。只有在特殊的情况下，可以得到完全的三次谐波输出。为了获得完全的三次谐波输出，必须使得经过第一块晶体后的剩余基波光子数目和因转换所产生的二次谐波的光子数目相等。设入射光基波的光子数目为99个，如果其中有66个基波光子转换成33个二次谐波光子，即二次谐波的转换效率为2/3，这时，剩下的33个基波光子和33个二次谐波光子能够完全和频，在晶体足够长的情况下，输出光强仅含有三次谐波，三次谐波的转换效率达到100%。如果第一块晶体太短或太长，即其二次谐波转换效率小于或大于2/3，均不能获得完全的三次谐波输出，不能获得最佳的转换效率。可以看出，对应于这种情况，对第一块晶体而言，存在着一个最佳长度。