

图3-4 考虑基波衰减条件下各次谐波的转换效率，对应于耦合系数比小于8:9

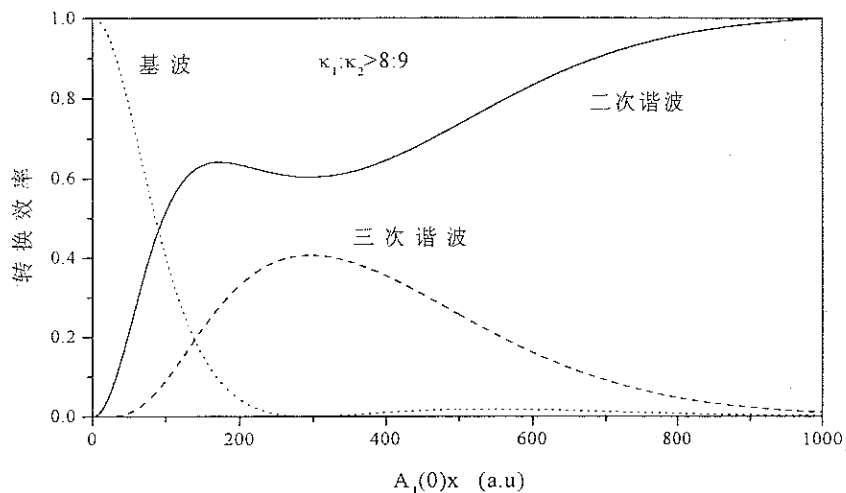


图3-5 考虑基波衰减条件下各次谐波的转换效率，对应于耦合系数比大于8:9

图3-4对应于 $\kappa_1:\kappa_2 < 8:9$ 的情况，二次谐波的转换效率较低，在达到最大的三次谐波转换效率时，二次谐波光子已经耗尽，仍然存在有剩余的基波光子。图3-5对应于 $\kappa_1:\kappa_2 > 8:9$ 的情况，二次谐波的转换效率较高，在达到最大的三次谐波转换效率时，基波光子已经耗尽，仍然存在有剩余的二次谐波光子。很显然，这两种情况下，均同样存在着一个产生最大三次谐波转换效率对应的最佳晶体长度。图3-6对应于 $\kappa_1:\kappa_2 = 8:9$ 的情况，二次谐波

的光子数与基波的光子数达到合适的比值，基波的光子和二次谐波的光子能够充分实现和频，在晶体足够长的情况下能够获得稳定的、转换效率达100%的三次谐波输出。

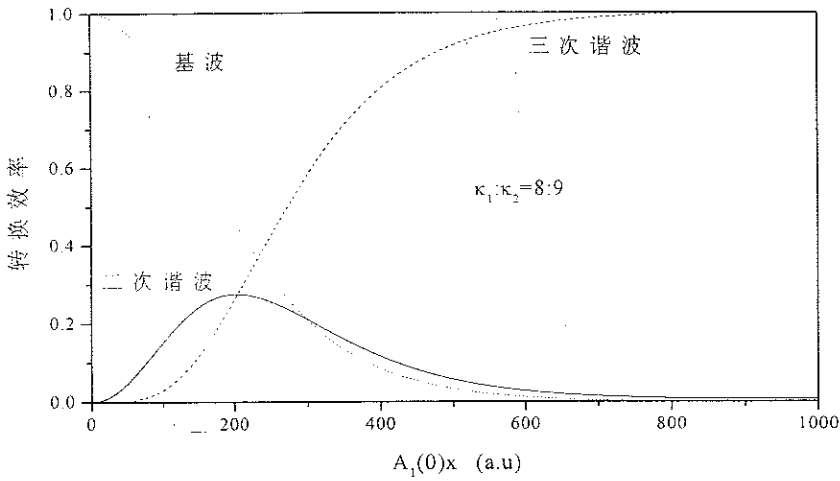


图3-6 考虑基波衰减条件下各次谐波的转换效率，对应于耦合系数比等于8:9

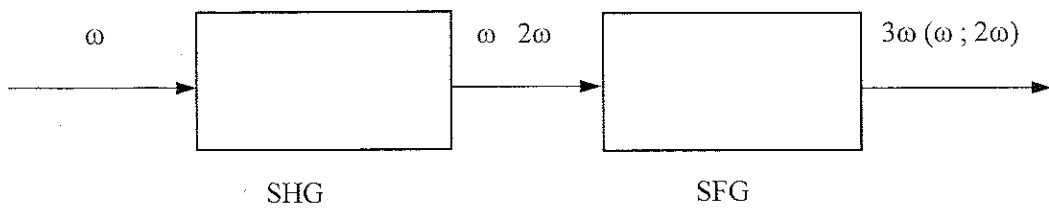
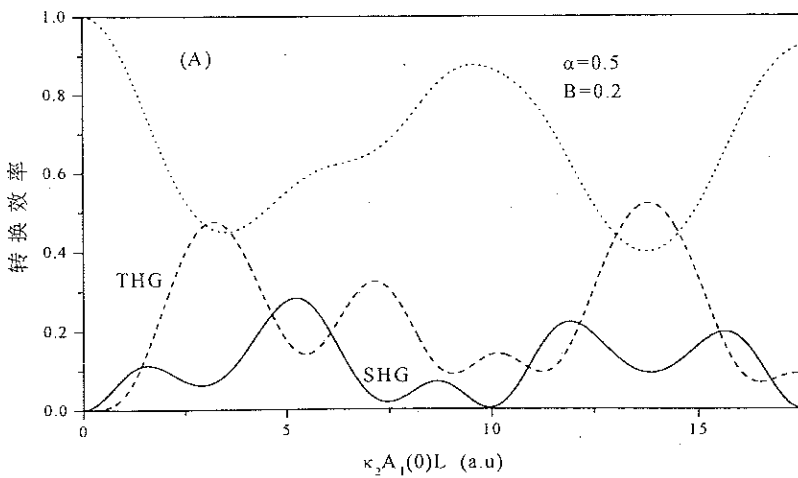


图3-7 两块晶体产生最佳三次谐波转换效率的示意图



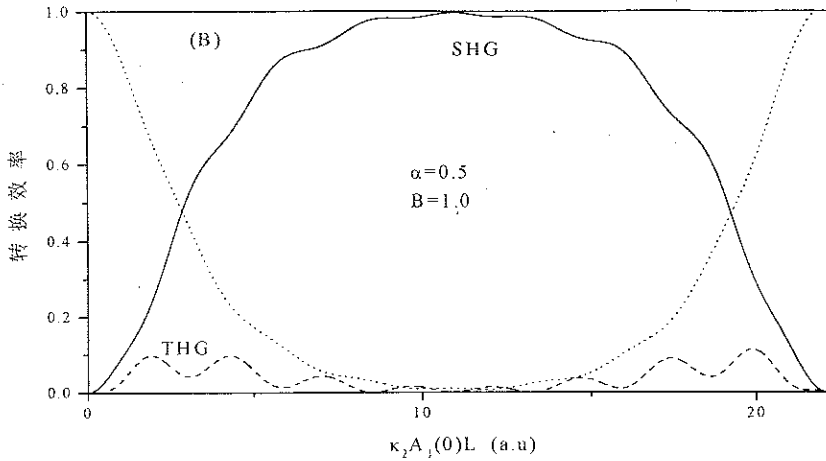


图3-8 考虑基波衰减条件下倍频准位相匹配、和频位相失配的转换效率
(a) 对应于较小的和频位相失配 (b) 对应于较大的和频位相失配

我们也计算了考虑基波衰减条件下，倍频失配量或者和频失配量对各次谐波转换效率的影响。比较图3-1和图3-8，对于较小的和频失配，由于耦合过程中基波的衰减，二次谐波及三次谐波的转换效率的周期性已经不明显，对于较大的和频失配，在考虑基波衰减条件下对二次谐波的耦合进一步减弱，二次谐波的转换效率在更大的范围内呈持续增长态势。比较图3-2和图3-9，对于较小的倍频失配，二次谐波及三次谐波转换效率的振荡趋于平缓，对于较大的倍频失配，考虑基波衰减条件下的三次谐波转换效率已经开始出现平台。另一方面，图3-8和图3-9中的二次谐波、三次谐波的转换效率明显低于小信号近似条件下的转换效率，这是因为振幅耦合方程中，二次谐波及三次谐波均与基波振幅有密切的联系，考虑基波衰减必然会导致二次谐波和三次谐波转换效率的下降。

根据上面的分析结果，耦合参量过程的材料设计应该遵循下列准则：

(1) 在周期、准周期结构中，选择一组倒格矢使其在某一特定基波波长条件下满足倍频及和频过程的准位相匹配。

(2) 对于参与变频过程的倒格矢，尽可能使其Fourier变换系数或有效非线性系数相对较大。

(3) 为了获得高效、稳定的三次谐波输出，应该尽可能满足耦合系数的比值 $\kappa_1 : \kappa_2 = 8 : 9$ 的条件，即满足方程

$$\frac{d_m(d_{m,n})}{d_n(d_{p,q})} = \frac{8}{9} \sqrt{\frac{3n_1}{n_3}} \quad (3-12)$$

(4) 在基本结构单元的宽度 l_A (周期结构)、 l_A 和 l_B (准周期结构) 确定以后, 可以优化结构单元的正畴宽度, 使对应的有效非线性系数取最大值。

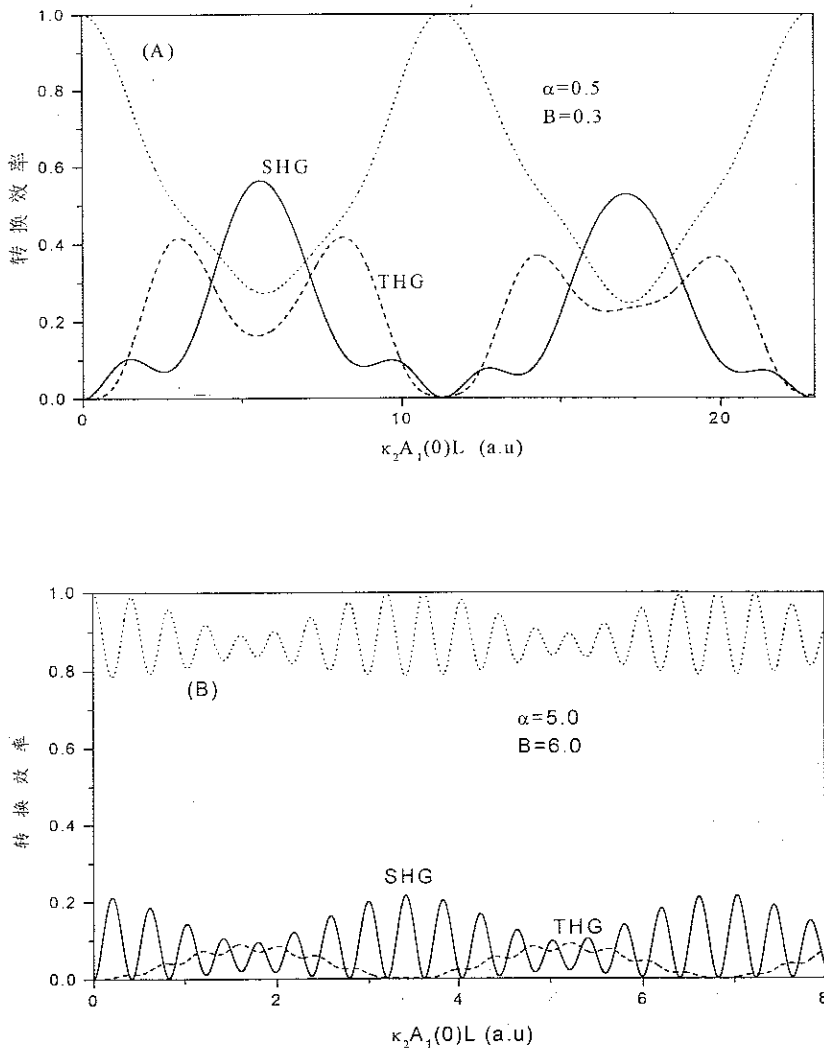


图3-9 考虑基波衰减条件下倍频位相失配、和频准位相匹配的转换效率
(a) 对应于较小的倍频位相失配 (b) 对应于较大的倍频位相失配

参考文献:

[1] 祝世宁 南京大学博士论文
[2] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, N.B.Ming, Science 278, 843 (1997)

[3] Feng, J., Zhu, Y.Y, Ming N.B Phys. Rev. B 41, 5578 (1990)

[4] 张超 南京大学 学士论文

第四章 推广的 Fibonacci 光学超晶格中的 激光变频效应

自准晶发现以来,人们对准周期结构的研究产生了浓厚的兴趣。准周期结构是介于周期结构和无序系统之间的一种新型结构,其能谱具有多分形性和自相似性^[1]。特别是在非线性光学变频领域具有广泛的应用前景。一维 Fibonacci 光学超晶格结构具有丰富的物理内容和相对简单的结构特征,已经在其结构、物性诸方面得到了广泛研究^{[2][4]}。1996年,我们实验室将室温极化技术用于 LT 准周期光学超晶格的制备,在 Fibonacci 光学超晶格中获得了高效的二次、三次谐波输出^{[5][6]},开辟了准周期光学超晶格中非线性光学研究的新领域。然而, Fibonacci 光学超晶格在激光频率转换应用方面有其自身的局限,必须寻找新的准周期结构。本章重点介绍了推广的 Fibonacci 结构,从理论和实验两个方面系统地研究了具有推广的 Fibonacci 序列结构的一维准周期光学超晶格中的激光变频效应。并对其相应的理论作了多层次的推广。

4-1 几种典型的二组元准周期结构

标准的 Fibonacci 结构是目前研究得最为广泛的准周期超晶格结构。设 A、B 为基本结构单元,一维 Fibonacci 序列可按照迭代规则 $S_j = S_{j-1} | S_{j-2}$ ($j \geq 3$) 迭代而成,其中 $S_1 = A$, $S_2 = AB$; Fibonacci 序列的迭代规则还可用二阶矩阵 M 来表示, $M = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}$, 即迭代过程 $\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix}$: $A \rightarrow AB, B \rightarrow A$ 。通过迭代我们容易得到: $S_3 = ABA$; $S_4 = ABAAB$; $S_5 = ABAABABA$;

为了获得高效的三次谐波产生,必须同时有两个倒格矢 $G_{m,n}$ 和 $G_{m',n'}$ 来补偿倍频及和频过程中的波矢失配因子 Δk_1 和 Δk_2 , 根据准周期结构所提供的两个倒格矢的比值,可以确定能够产生高效准位相匹配三次谐波的基波波长。由于标准的 Fibonacci 结构能够提供具有较大有效非线性系数的倒格矢有限,因而能够产生高效三次谐波的基波波长也有限。为了在更多的基波波长产生有效的高次谐波,必须寻找新的结构及其相应的光学超晶格。Thue-Morse 结构由两个基本单元 A 和 B 构成,可按照迭代规则 $S_j = S_{j-1} | S_{j-1}^+$ ($j \geq 2$) 迭代而成,即 $A \rightarrow AB, B \rightarrow BA$ 。其中 $S_1 = AB$, S_{j-1}^+ 是由 S_{j-1} 中 A、B 相互交换后得到。通过迭代容易得到: $S_2 = ABBA$; $S_3 = ABBABAAB$;

一般都认为这种结构介于准周期与无序之间^[7]，但我们发现这种结构的 Fourier 变换谱更类似于周期性结构。也就是说，从倒空间的性质来看，这种结构介于周期与准周期之间^[8]。

Inter-Growth 结构也是由两个基本单元 A 和 B 构成，整个序列按照迭代规则 $S_j = 2S_{j-1} + S_{j-2}$ ($j \geq 3$) 迭代而成，其中 $S_1 = A$ 。该迭代规则还可用二阶矩阵来表示迭代过程 $\begin{bmatrix} B \\ A \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix}$ ：A→AB, B→ABA。通过迭代我们容易得到： $S_2 = AB$; $S_3 = ABABA$; $S_4 = ABABAABBAAB$ 定义 $\alpha = \lim_{j \rightarrow \infty} F_j / F_{j-1}$, F_j 为第 j 代序列的基本单元数目，有 $\alpha^2 - 2\alpha - 1 = 0$, $\alpha = \sqrt{2} + 1$ 。而第 j 代系列中 A、B 基本单元的数目之比 τ 满足方程 $\tau^2 = 2$ ，即 $\tau = \sqrt{2}$ 。

推广的 Fibonacci 铁电体光学超晶格仍然由 A、B 两个基本单元构成，每一基本单元都是由一片正畴和一片负畴构成， $S_1 = A$, $S_2 = \underbrace{A \cdots AB}_m$, $S_3 = \underbrace{(A \cdots AB) \cdots (A \cdots AB) A}_m, \dots, S_j = (mS_{j-1}) | S_{j-2}$ ($j \geq 3$)，这里 | 代表连接符号，m

为正整数。推广的 Fibonacci 序列迭代规则还可用二阶矩阵 $\begin{bmatrix} m & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}$ 来表示，

即 $\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix}$ ：A→ $\underbrace{A \cdots AB}_m$, B→A。图 4-1 对应于具有 m=2 推广的 Fibonacci 准周期光学超晶格示意图。

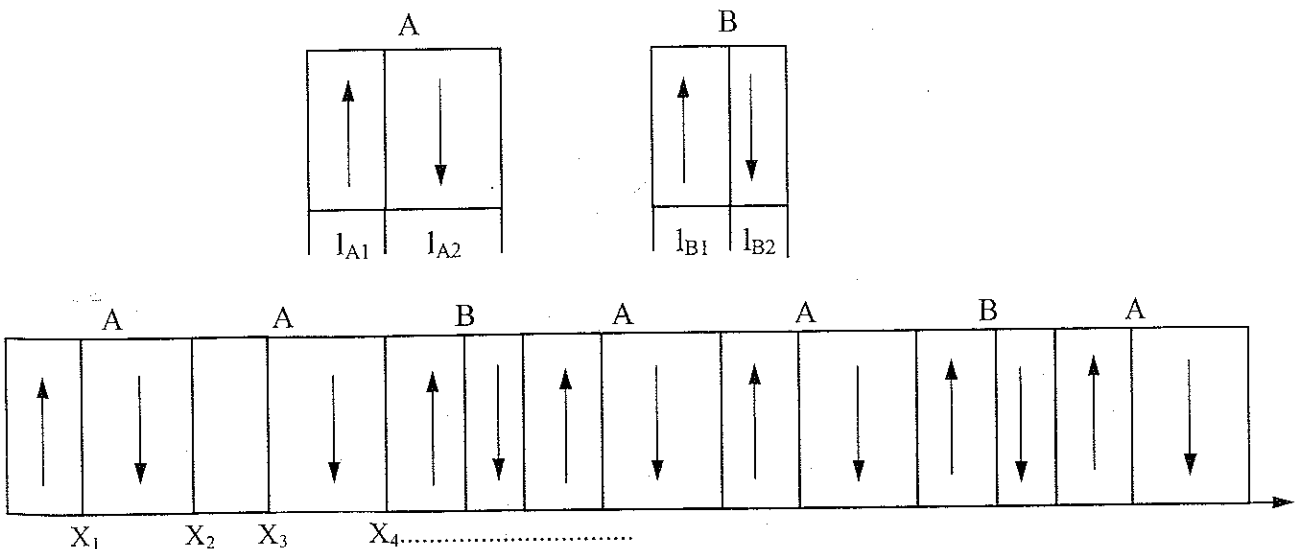


图 4-1 推广的 Fibonacci 准周期光学超晶格示意图

4-2 推广的 Fibonacci 准周期光学超晶格的理论分析

如前所说, 准周期光学超晶格中的有效非线性系数随着铁电畴的调制作准周期变化, 调节因子 $f(x) = +1$ 和 $f(x) = -1$ 分别对应于正负铁电畴。因为 $f(X)$ 是准周期函数, 可以表示成 Fourier 积分: $f(X) = \int f(k)e^{-ikX} dk$, 当 $l_A = l_B = l$ 时, $f(k)$ 可以表示成:

$$\begin{aligned} f(k) &= \frac{1}{D} \int f(X)e^{ikX} dX = \frac{1}{D} \frac{2}{ik} \left\{ \sum_j e^{ikX_{2j+1}} + e^{i\pi} \sum_j e^{ikX_{2j}} \right\} \\ &= \frac{4}{Dk} e^{\frac{ikl}{2}} \sin\left(\frac{1}{2}kl\right) \sum_j e^{ikX_{2j}} \end{aligned} \quad (4-1)$$

\bar{D} 为准周期结构的平均结构参数, l 为正畴的宽度。通过投影方法^[9], 可以得到:

$$\sum_j e^{ikX_{2j}} = \sum e^{-iZ_{pn}} \frac{\sin(Z_{pn}/2)}{Z_{pn}/2} \delta(Q\bar{D} - Q_{pn}\bar{D}) \quad (4-2)$$

$$Q_{pn} = \frac{2\pi}{D} \left(n + \frac{p}{\sigma} \right)$$

$$Z_{pn} = \frac{2\pi}{D} [n(d_A - d_B) - pd_B]$$

$$\bar{D} = d_B + \frac{d_A - d_B}{\sigma}$$

p, n 为整数, d_A 和 d_B 为 A、B 两个基本单元的宽度,

$$\sigma(m) = \frac{2 - m + (4 + m^2)^{1/2}}{2}.$$

为了与标准的 Fibonacci 结构有相似的表达形式, 我们可以对上式进行化

简: 首先定义: $\gamma(m) = \frac{m + (4 + m^2)^{1/2}}{2}$ 则

$$\bar{D} = d_B + \frac{d_A - d_B}{\sigma} = \frac{d_A}{\sigma} + \frac{(\sigma - 1)d_B}{\sigma} = \frac{1}{\gamma\sigma} [\gamma d_A + \gamma(\sigma - 1)d_B] = \frac{1}{1 + \gamma} [\gamma d_A + d_B]$$

$$Z_{pn} = \frac{2\pi}{D} [n(d_A - d_B) - pd_B] = \frac{2\pi}{D} [nd_A - (n + p)d_B] = \frac{2\pi(1 + \gamma)}{\gamma d_A + d_B} [nd_A - pd_B] \quad (4-3)$$

$$Q_{pn} = \frac{2\pi}{D} \left(n + \frac{p}{\sigma} \right) = \frac{2\pi(\gamma\sigma)}{\gamma d_A + d_B} \left(n + \frac{p}{\sigma} \right) = \frac{2\pi}{\gamma d_A + d_B} [(1+\gamma)n + \gamma p]$$

$$= \frac{2\pi}{\gamma d_A + d_B} [n + (n+p)\gamma] = \frac{2\pi}{\gamma d_A + d_B} [n + p\gamma] \quad (4-4)$$

其中令 $n = n$, $n+p = p$ 。

$$f(X) = \frac{2(1+\gamma)l}{\gamma d_A + d_B} \sum_{pn} e^{i(\frac{Q_{pn}l}{2} - Z_{pn})} \frac{\sin(Q_{pn}l/2)}{(Q_{pn}l/2)} \frac{\sin(Z_{pn}/2)}{(Z_{pn}/2)} e^{-iQ_{pn}X} \quad (4-5)$$

Q_{pn} 为推广的 Fibonacci 结构的倒格矢, $\gamma(m)$ 为贵金属分割数。m=1, 2, 3 分别对应于金、银、铜分割数。 $\gamma(1) = \frac{1+\sqrt{5}}{2} = \tau$ 对应于标准的 Fibonacci 准周期结构。当 p、n 近似等于相邻的 Fibonacci 数时, 其倒格矢 Q_{pn} 可以采用新的整数指标 s 和 h 并改写成

$$Q_{pn} = \frac{2\pi}{\gamma(m)d_A + d_B} s[\gamma(m)]^h \quad (4-6)$$

当 m=2 时, p、n 分别取 (1, 0); (2, 1); (5, 2); (7, 3); (17, 7) 时, 改写后的 $Q_{s,h}$ 指标 s、h 分别为 (1, 1); (1, 2); (1, 3); (1, 4); (1, 5)。并且 $Q_{s,h}$ 满足方程 $Q_{s,h+1} = mQ_{s,h} + Q_{s,h-1}$, 具有广义的自相似性。这种自相似性在二次谐波谱中能够清楚地表现出来。在 $f(X)$ 的 Fourier 变换中, 令系数因子

$$f(Q_{pn}) = \frac{2(1+\gamma)l}{\gamma d_A + d_B} \frac{\sin(Q_{pn}l/2)}{(Q_{pn}l/2)} \frac{\sin(Z_{pn}/2)}{(Z_{pn}/2)} \quad (4-7)$$

则准周期光学超晶格的有效非线性系数可写成 $d_{\text{eff}} = d_{pn} = f(Q_{pn})d$ 。显然不同的倒格矢对应于超晶格中不同的有效非线性系数。了解不同倒格矢对应的有效非线性系数即调制函数的 Fourier 变换系数, 对于选择参与准位相匹配的倒格矢, 实现稳定、高效的谐波输出是十分重要的。

另一方面, 对于某些复杂的准周期结构或者是有限长的准周期结构, 它们的 Fourier 变换系数无法通过解析式直接求解。遇到这种情况, 我们可以采用数值 Fourier 变换方法对调制函数进行积分变换, 找出 Fourier 变换系数与准周期超晶格倒格矢的对应关系。周期或准周期结构调制函数的 Fourier 展开系数可表示为 $F(Q) = \frac{1}{L} \int_0^L f(x)e^{-iQx} dx$, 其中 L 为超晶格的总长

度, Q 为该结构的倒格矢。图 4-2 给出了用数值 Fourier 变换方法得到的推广的 Fibonacci ($m=2$) 结构超晶格的频谱分布。对应的参数: A 、 B 长度分别为 21.8、9.0 微米, 结构参数 l 为 5.0 微米, A 、 B 总数为 1000。

为了便于比较, 我们将数值计算和理论计算得到的 Fourier 系数列表如下, 很明显可以看出, 理论计算和数值计算的结果非常接近。

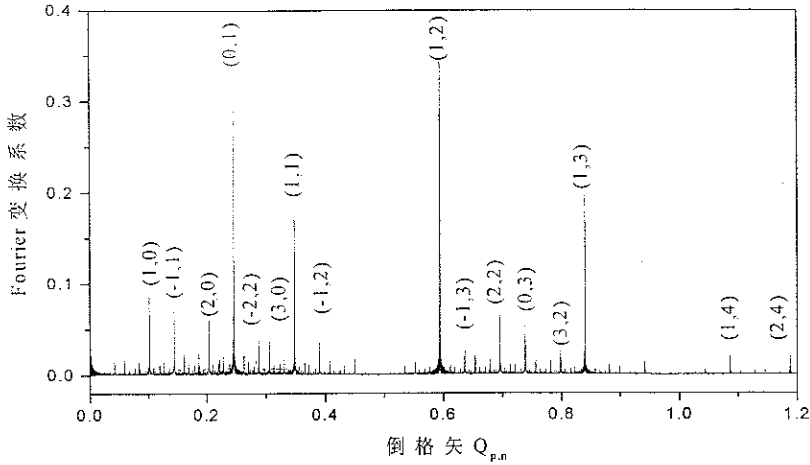


图 4-2 推广的 Fibonacci 结构的频谱图, N 为结构单元的总数

4-3 有效非线性系数的变化规律

表 4-1 指数 p,n 、倒格矢 $Q_{p,n}$ 与有效非线性系数的对应关系

p,n	倒格矢 $Q_{p,n}$	数值计算结果	理论值 (无限长)
(-2,1)	0.0422	0.0148	0.0161
(3,-1)	0.0597	0.0166	0.0159
(1,0)	0.1020	0.0855	0.0877
(-1,1)	0.1442	0.0788	0.0806
(2,0)	0.2039	0.0607	0.0674
(0,1)	0.2461	0.3303	0.3318
(-2,2)	0.2884	0.0447	0.0455
(3,0)	0.3059	0.0402	0.0408
(1,1)	0.3481	0.1714	0.1730
(-1,2)	0.3903	0.0401	0.0407
(2,1)	0.4500	0.0188	0.0191
(0,2)	0.4923	0.0013	0.0012
(3,1)	0.5520	0.0150	0.0153
(1,2)	0.5942	0.3448	0.3451
(-1,3)	0.6364	0.0329	0.0329
(2,2)	0.6962	0.0667	0.0681
(0,3)	0.7384	0.0610	0.0615
(3,2)	0.7981	0.0271	0.0283
(1,3)	0.8403	0.1974	0.1977

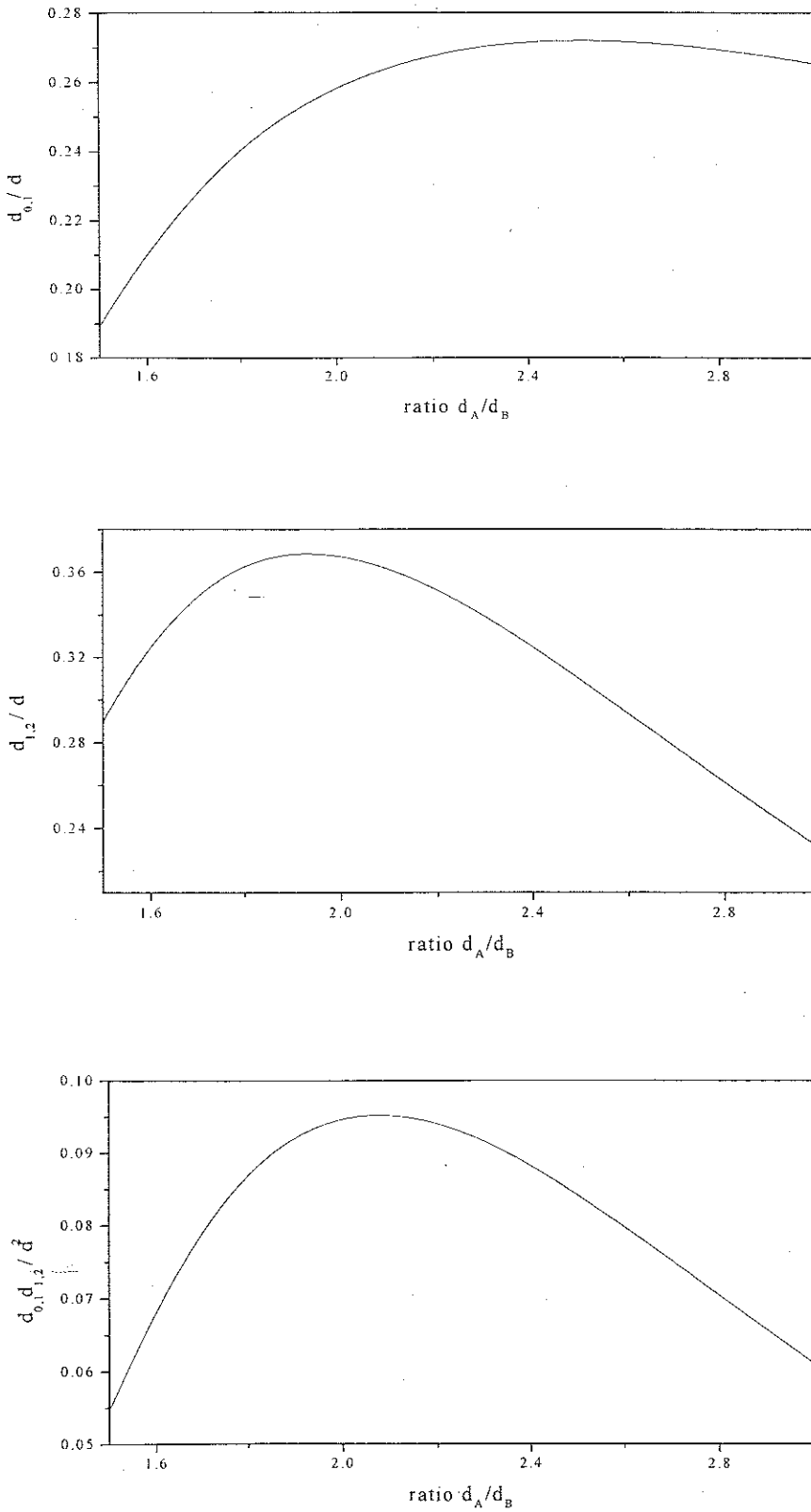


图 4-3 $d_{0,1}$ 、 $d_{1,2}$ 及 $d_{0,1}d_{1,2}$ 随 A、B 两个基本单元宽度之比(d_A/d_B) 的变化曲线。

有效非线性系数 $d_{p,n}$ 不仅取决于整数 p,n 的取值, 而且还受到准周期超晶格各结构参数的影响, 充分了解有效非线性系数随各结构参数的变化规律, 对于准周期光学超晶格的设计、制备是十分重要的。图4--3 为 $d_{0,1}$ 、 $d_{1,2}$ 及 $d_{0,1}d_{1,2}$ 随 A、B 两个基本单元宽度之比 (d_A/d_B) 的变化曲线。图4--5 为 $d_{0,1}$ 、 $d_{1,2}$ 及 $d_{0,1}d_{1,2}$ 随 A、B 两个基本单元之正畴宽度(结构参数 l) 的变化曲线。理论分析表明, 小信号近似下, 二次谐波的光强正比于有效非线性系数 $d_{p,n}$ 的平方 ($d_{p,n}$ 对应的倒格矢 $Q_{p,n}$ 用于倍频的位相匹配), 三次谐波的光强正比于有效非线性系数 $d_{p,n}$ 及 $d_{p',n'}$ 乘积的平方 ($d_{p,n}$ 对应的倒格矢 $Q_{p,n}$ 用于倍频的位相匹配, $d_{p',n'}$ 对应的倒格矢 $Q_{p',n'}$ 用于和频的位相匹配)。我们计算了小信号近似下二次谐波、三次谐波随参数 d_A/d_B 及 l (正畴宽度) 的变化曲线, 分别如图4--4 及图4--6 所示。结果显示, 二次谐波光强的变化规律与 $d_{0,1}$ 的变化规律是一致的, 三次谐波光强的变化规律与 $d_{0,1}d_{1,2}$ 的变化规律是一致的。

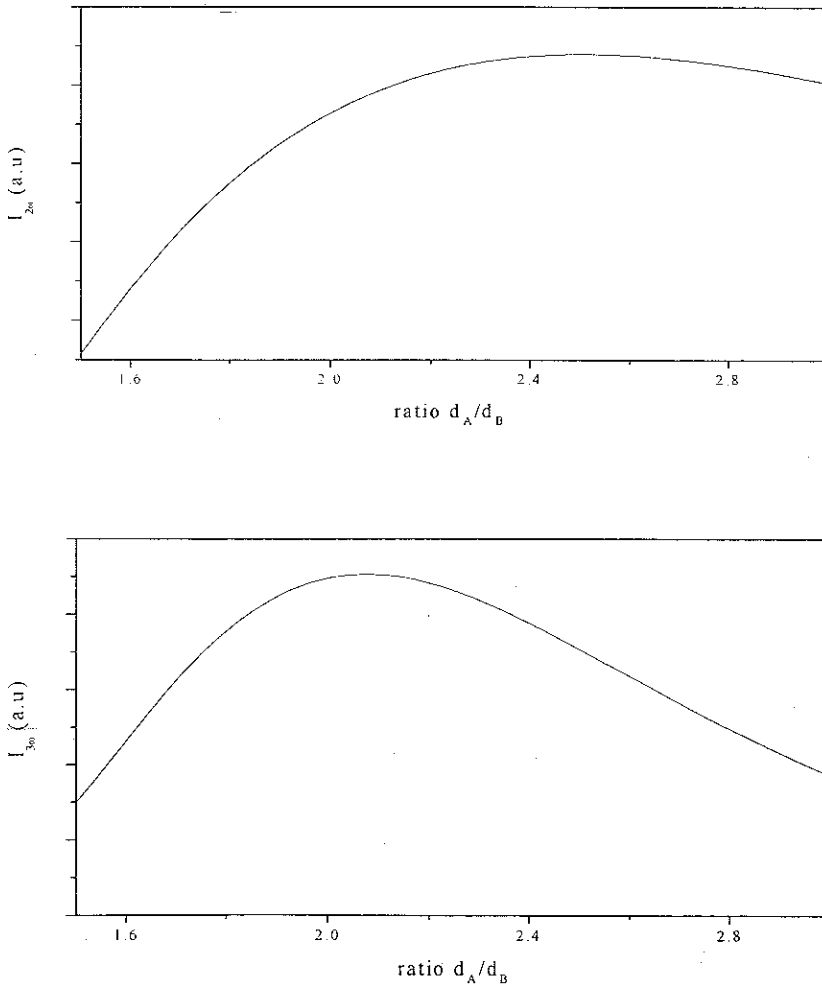
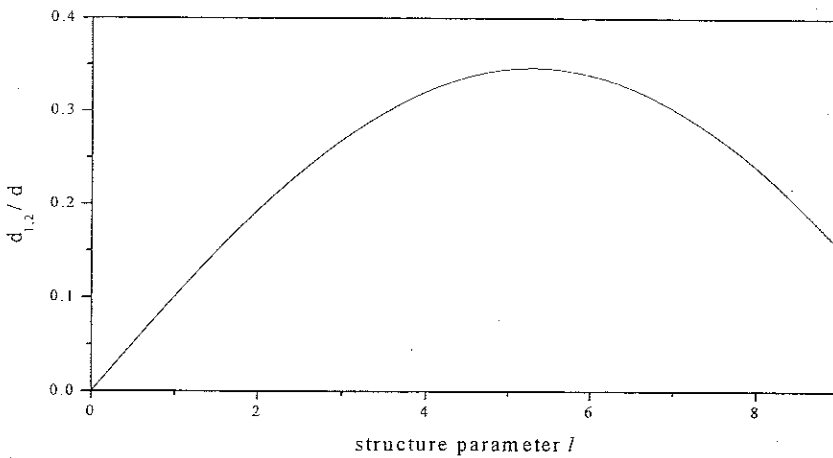
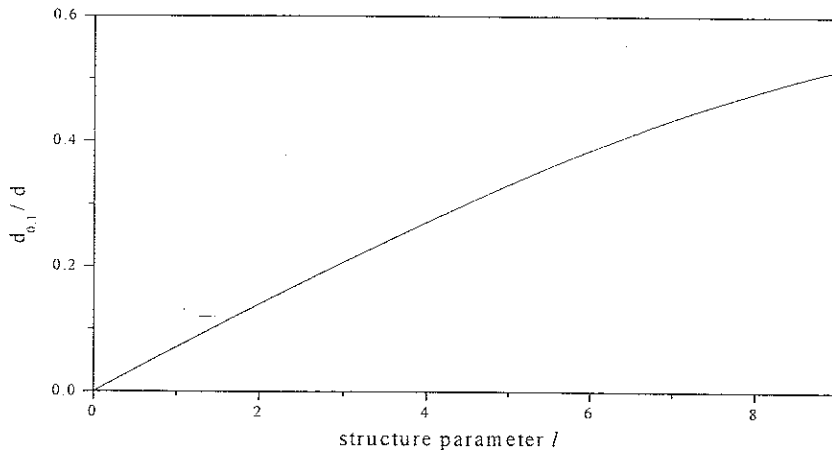


图4-4 二次谐波、三次谐波光强随 A、B 两个基本单元宽度之比 (d_A/d_B) 的变化曲线。

从图 4-4 及图 4-6 可以看出, 二次谐波光强和三次谐波光强随结构参数变化具有不同的变化规律, 这对我们的样品设计具有重要的理论指导意义, 当需要制备成多波长二次谐波发生器时, 可以选择对应于二次谐波光强(某一 Fourier 变换系数)较大的各结构参数。当需要产生直接的三次谐波输出, 应该选择对应于三次谐波光强(某两 Fourier 变换系数乘积)较大的结构参数。



一般说来, 推广的 Fibonacci 结构是指 A 单元的数目与 B 单元的数目之比等于贵金属分割数 $\gamma(m)$, 如果 A 单元的宽度与 B 单元的宽度之比也等于贵金属分割数 $\gamma(m)$, 这样的结构称之为原始的 Fibonacci 结构。很明显, 二次谐波和三次谐波的最有效输出并不对应于原始的 Fibonacci 结构, 这些特征为我们的样品设计提供了理论依据以及更多的选择自由度。

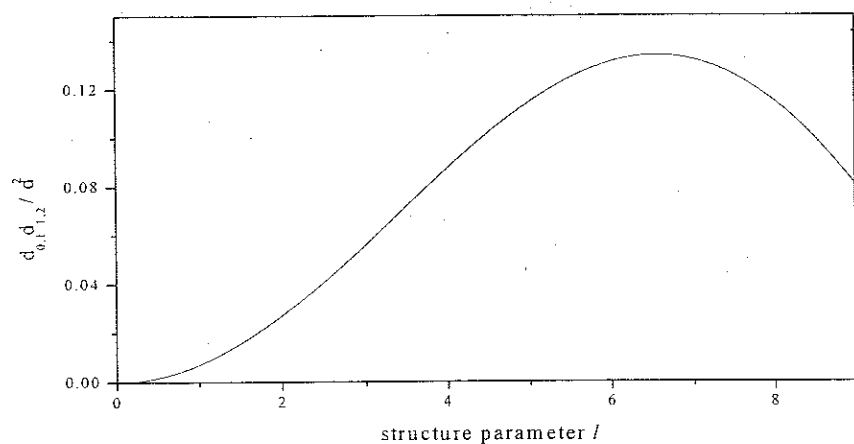


图4-5 $d_{0,1}$ 、 $d_{1,2}$ 及 $d_{0,1}d_{1,2}$ 随 A、B 两个基本单元之正畴宽度(结构参数 l)的变化曲线。

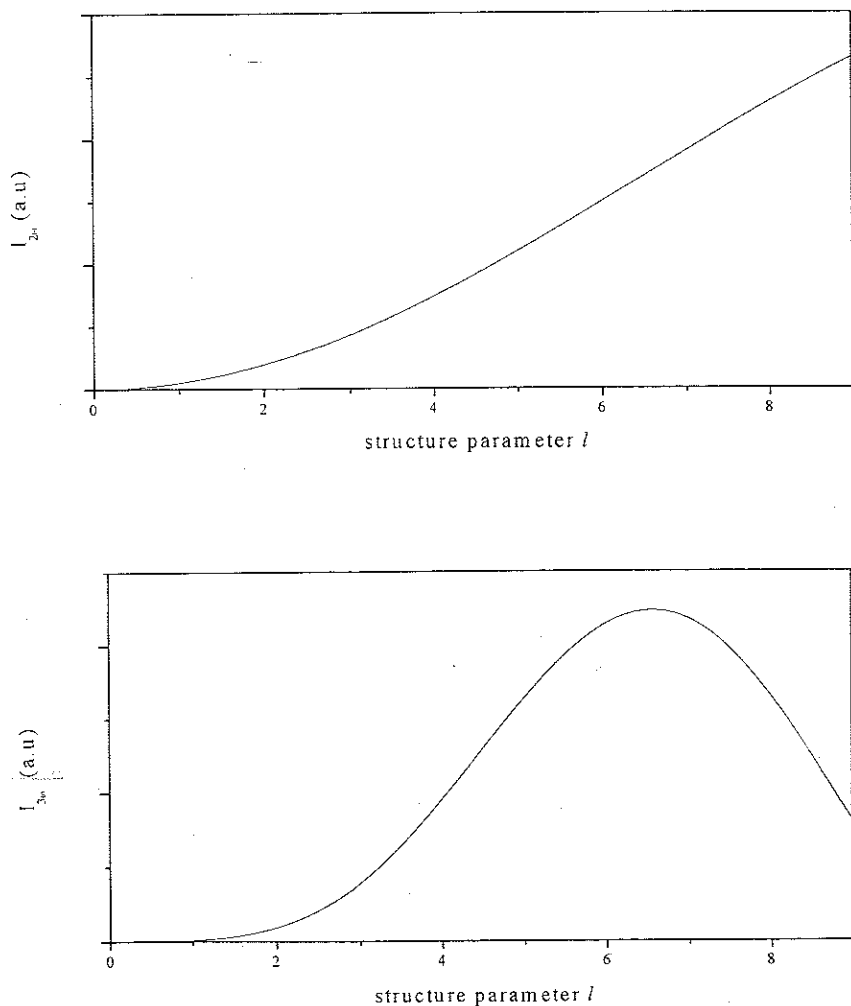


图4-6 谐波光强随 A、B 两个基本单元之正畴宽度(结构参数 l)的变化曲线

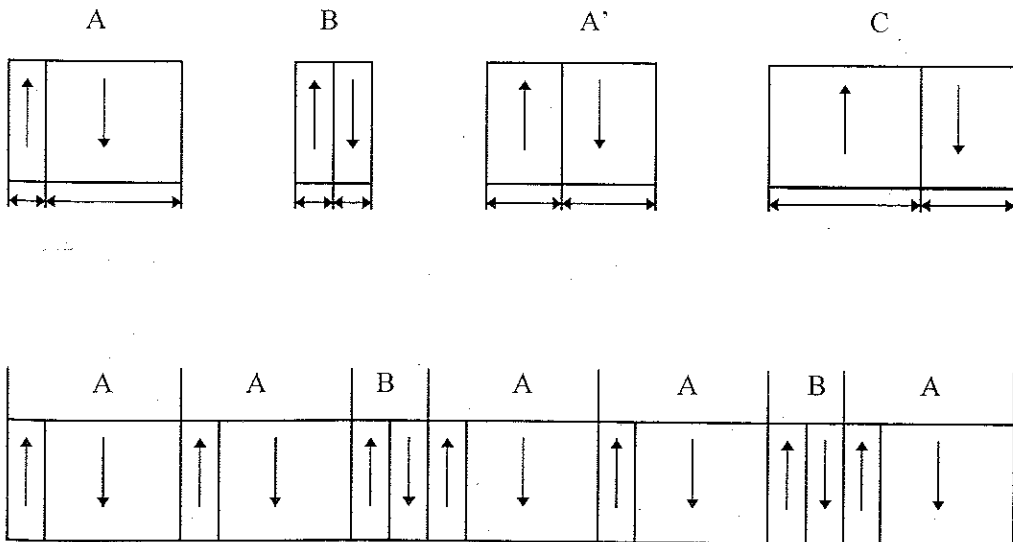
4-4 二次谐波、三次谐波的实验结果

从上面的分析还可以看到，大部分倒格矢 $Q_{p,n}$ 对应的有效非线性系数 $d_{p,n}$ 都是很小的，当 p, n 分别等于 0,1、1,1、1,2、1,3 时，其对应的有效非线性系数较大，我们在实验中必须选择对应于具有较大有效非线性系数的倒格矢来匹配倍频、和频过程中的位相失配，以获得高效的高次谐波输出。

在我们的样品设计中，选用倒格矢 $Q_{0,1}$ 来实现倍频过程中的位相匹配，选用倒格矢 $Q_{1,2}$ 来实现和频(倍频与基频和频)过程中的位相匹配，由此可以决定准周期结构的平均结构参数 $D = \gamma(m)d_A + d_B$ 。D 满足：

$$\begin{aligned} \frac{2\pi(p+n\gamma)}{D} &= \frac{\pi}{l_{2c}} & \text{其中} & & l_{2c} &= \frac{\lambda}{4(n_2 - n_1)} \\ \frac{2\pi(p'+n'\gamma)}{D} &= \frac{\pi}{l_{3c}} & & & l_{3c} &= \frac{\lambda}{2(3n_3 - 2n_2 - n_1)} \end{aligned} \quad (4-8)$$

l_{2c} 和 l_{3c} 分别是倍频与和频的相干长度。当 $p, n = 0, 1$ 及 $p', n' = 1, 2$ 时，D 等于 $60.3\mu\text{m}$ ，对于的基波波长为 $1.7011\mu\text{m}$ 。两个基本单元的具体参数为 $d_{A1} = d_{B1} = 4.0\mu\text{m}$ ， $d_{A2} = 17.3\mu\text{m}$ ， $d_{B2} = 4.9\mu\text{m}$ 。样品的制备采用脉冲室温极化技术，样品的厚度为 0.5mm ，样品长度约为 10mm ，共计 577 个 A 和 B 单元，对应于第 8 代 $m=2$ 的 Fibonacci 序列。图 4-7(d) 是制成后样品 y 面剖面的腐蚀显微照片，我们期望电畴反转仅发生在电极的下方(称之为设计结构，如图 4-7(b))，然而，实验中样品的极化结果有了很大差别(称之为极化结构，如图 4-7(c)-(d))。下面我们将详细讨论这两种结构的特性。



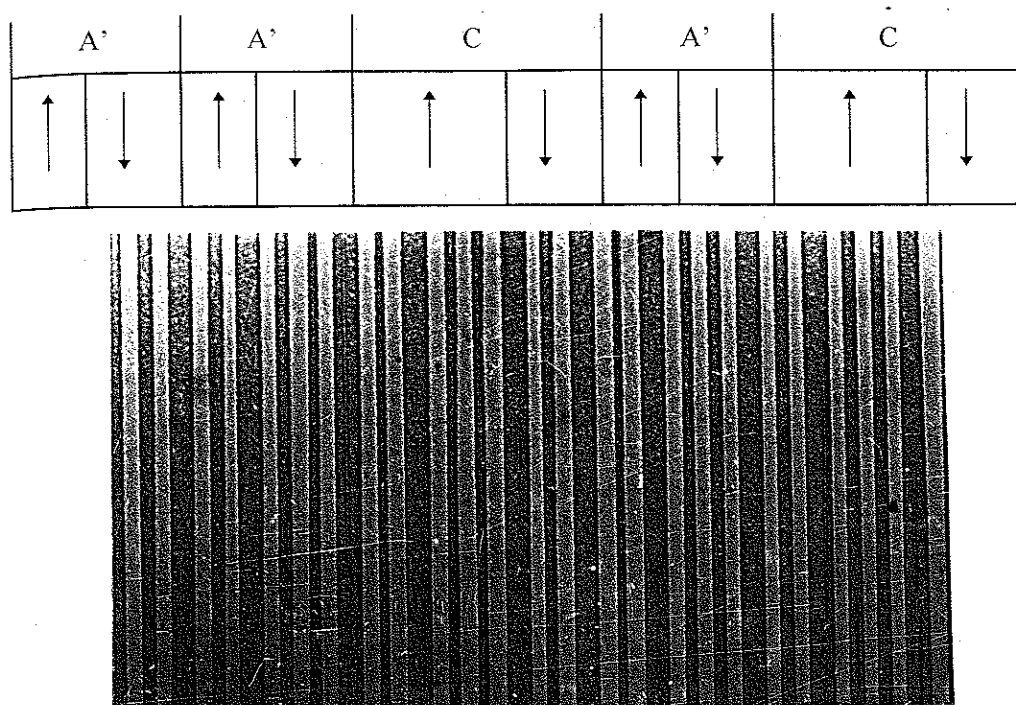


图4-7 推广的Fibonacci 光学超晶格(m=2)。(a) 两种结构的基本单元;
 (b) 设计结构示意图; (c) 极化结构示意图;
 (d) 用浸蚀法显示的 光学超晶格的光学显微照片。

样品测量前将两个通光面抛光，测量所用的光源为可调谐的 ps OPO/OPA 系统。泵浦光源为美国 Continue 公司生产的锁模 Nd-YAG 激光器，输出波长 355nm, 脉宽 15ps, 重复频率 10Hz。OPA 为中国科学院物理研究所生产的可调谐光参量放大器。实验示意图如图4-8 所示。其基波光偏振方向沿晶体的 z 轴以利用材料的最大非线性系数 d_{33} 。准位相匹配的二次谐波及三次谐波输出通过 $e^\omega e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 和 $e^\omega e^{2\omega} \rightarrow e^{3\omega}$ 方式来实现。透镜焦距等于 15cm。

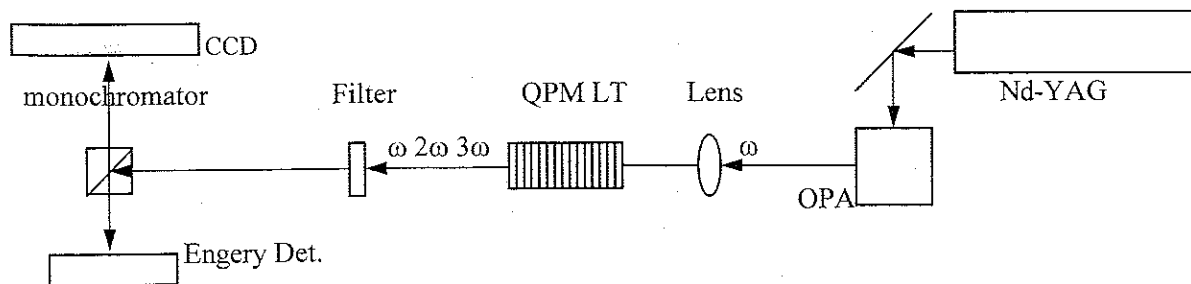


图 4-8 实验装置示意图。

我们测量了基波在 900nm---1800nm 区间的二次谐波发生谱。当基波波长在该范围内调谐时，可以得到从蓝光到近红外光的倍频输出(图4-9)。二次谐波峰的位置与理论上估计的结果一一对应，其强度与给出的有效非线性系数 $d_{p,n}$ 相符。在基波平均功率1.5mW时得到转换效率 5% - 20% 的二次基波输出。

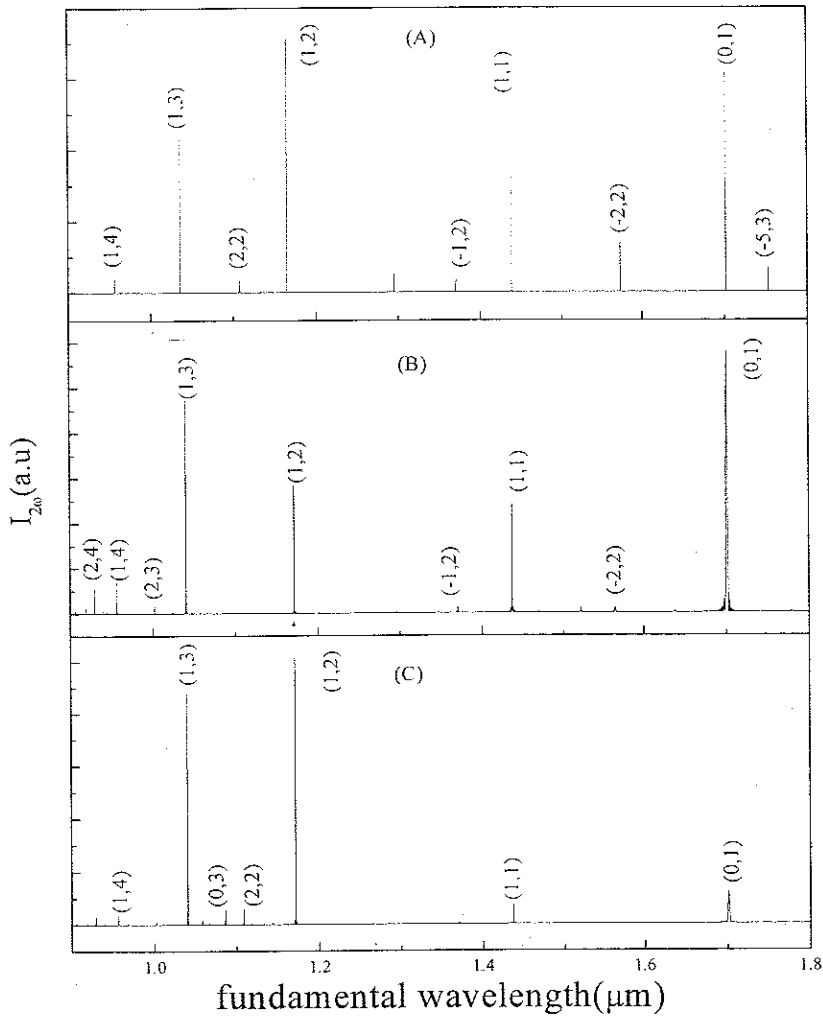


图4-9 二次谐波光强随基波波长的变化规律 (a)实验测量结果，
(b) AABAABA 序列的计算结果 (c) A'A'CA'CA'A'C 序列的计算结果

三次谐波的测量结果列于表4-2。当基波波长调谐到1.7015 μm 时，得到了高效的三次谐波黄光输出，与理论估计的基波波长1.7011 μm 非常接近，所对应的两个倒格矢分别为 $Q_{0,1}$ 和 $Q_{1,2}$ 。在基波平均功率1.7mW 时得到 0.37mw

的黄光输出, 转换效率约为22%。实验过程中我们还测量到其他基波波长的三次谐波产生, 对应的转换效率很低, 这是因为这些基波波长所对应的倍频过程和和频过程不能同时满足准位相匹配, 或者是所对应的有效非线性系数非常小。因此, 为了获得高效的三次谐波输出, 必须同时满足倍频及和频过程的准位相匹配以及对应于较大的有效非线性系数。

表4-2 三次谐波、四次谐波的基波波长与倒格矢指数的对应关系

	THG			FHG
Index Pair	1,1 ; 2,3	-2,2 ; 5,1	0,1 ; 1,2	-5,3 ; 7,3
f _{th} (μm)	1.4379	1.5649	1.7011	-----
f _{exp} (μm)	1.4473	1.5734	1.7015	1.7533

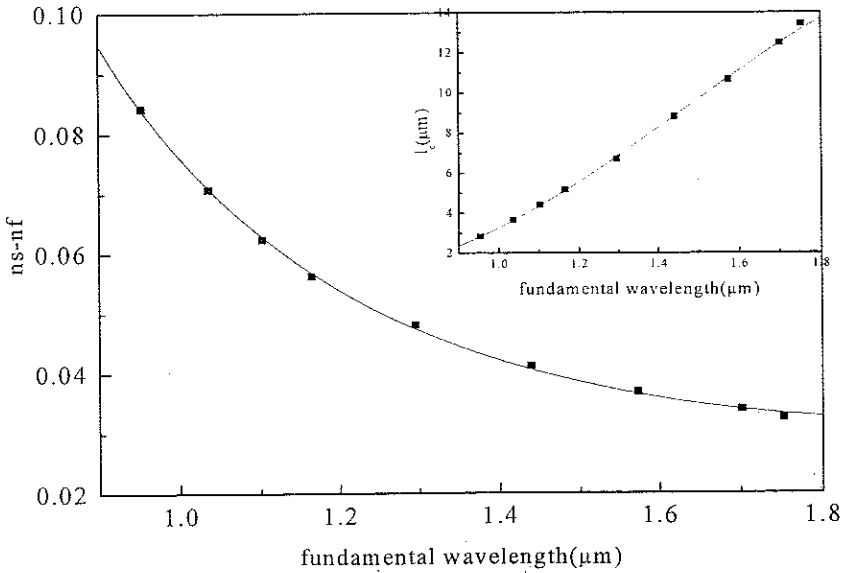


图4-10 折射率随基波波长变化的测量曲线, nf、ns 分别代表基波和二次谐波的折射率。右上图为二次谐波相干长度与基波波长的关系

实验测量中, 除了能够观察到二次谐波及三次谐波谱, 在基波波长1.7533μm处观察到一很弱的四次谐波产生, 这是由两个倍频过程耦合而成的, 即 $e^\omega e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$ 和 $e^{2\omega} e^{2\omega} \rightarrow e^{4\omega}$ 。所参与匹配的倒格矢可能是 $Q_{-5,3}$ 和 $Q_{7,3}$, 因

为这两个倒格矢所对应的有效非线性系数相当小，四次谐波的光强是非常低的。

值得一提的是，根据二次谐波谱的测量结果，我们可以确定LT晶体的非寻常光的色散关系。实验结果如图4-10所示。图中的插图为相干长度与基波波长的关系曲线。根据文献中所报道的基波波长等于 $1.40\mu\text{m}$ 时LT的折射率数值，我们得到其色散关系：

$$n^2=4.51982+0.09173/(\lambda^2-0.02639)-0.02114\lambda^2 \quad (4-9)$$

λ 是非寻常光的基波波长。

4-5 推广的 Fibonacci 结构 ($m=2$) 与 Intergrowth 结构的比较

这里我们讨论一个有趣的现象，我们设计的结构是推广的 Fibonacci 结构 ($m=2$)，具体参数如图4-7(a)、(b)所示，然而经过极化以后，该结构有了很大的改变，如图4-7(a)、(c)、(d)所示，事实上，极化过程中的电畴反转不仅发生在电极所覆盖的区域，也同样发生在电极之间的区域^[10]，即我们第一章中所讨论的横向扩展。通常，准周期结构的图案电极镀在样品的表面，反转畴的成核首先出现在电极的下面，然后经过纵向扩展和横向扩展两个过程，如果极化电压所用的脉冲宽度足够长，电极之间的区域就会被反向畴的横向扩展填满。在我们的极化样品中，B单元与紧接的A单元合并成一个新的结构单元C，而原来的A单元也因其正负畴的宽度发生变化而变为A'。也就是说，原来的 Fibonacci 结构 ($m=2$) AABAABAAAB..... 变成了新的结构 A'A'CA'CA'A'C..... 即所谓极化结构。在实空间，这两种结构是完全不同的。然而令人吃惊的是，数值计算显示：这两种结构的二次谐波谱是完全相似的，仅仅是二次谐波强度分布有些差异。我们知道，相同准周期结构具有相同的倒格矢分布，而各结构参数的改变仅导致其 Fourier 变换系数的变化，继而引起二次谐波谱光强分布的变化。另一方面，由于准位相匹配的二次谐波谱与该结构所提供的倒格矢有一一对应的关系，因此这两种结构在倒格矢空间一定存在着某种内在联系。对于 $m=2$ 的推广的 Fibonacci 结构，其倒格矢可表示为：

$$Q_{p,n} = \frac{2\pi(p+n\gamma)}{D} \quad (4-10)$$

$$D=\gamma d_A+d_B, \gamma=1+\sqrt{2}.$$

对于极化结构，满足 $A' \rightarrow A'C$ ， $C \rightarrow A'CA'$ 。这就是本章开始介绍的 Intergrowth 结构。其倒格矢分布表示为

$$Q_{p',n'} = \frac{2\pi(p'+n'\gamma')}{D} \quad (4-11)$$

$$D = \gamma'd_A + d_C, \quad d_C = d_A + d_B, \quad d_A = d_A, \quad \gamma' = \sqrt{2}.$$

比较以上两式, 两种结构的倒格矢具有相同的表示方程。当然, p 、 n 与 p' 、 n' 有不同的取值, 如 $Q_{1,1}(m=2) = Q_{2,1}(I-G)$ 。

4-6 推广的 Fibonacci 结构有效非线性光学系数的简化和进一步推广

本章第二节中, 通过投影方法, 得到了推广的 Fibonacci 结构的 Fourier 变换关系式, 这是一个普遍适用的公式, 在其他许多结构中也是能够适用的。在 Fourier 变换因子中:

$$f(Q_{pn}) = \frac{2(1+\gamma)l \sin(Q_{pn}l/2) \sin(Z_{pn}/2)}{\gamma d_A + d_B} \frac{\sin(Q_{pn}l/2)}{(Q_{pn}l/2)} \frac{\sin(Z_{pn}/2)}{(Z_{pn}/2)} e^{i(\frac{Q_{pn}l}{2} - Z_{pn})} \quad (4-12)$$

当 $\gamma = \tau$ 时, 就是我们熟知的标准 Fibonacci 结构的 Fourier 展开系数。我们也可以根据此式讨论周期结构的 Fourier 展开系数。对应于周期结构, 显然有 $d_A = d_B$, $n = p$, 此时:

$$\bar{D} = d_B = d_A = d, \quad Z_{pn} = 0$$

$$Q_{pn} = Q_n = \frac{2\pi}{d} n$$

Fourier 展开系数可简化为:

$$f(Q_n) = \frac{2l \sin(Q_{pn}l/2)}{d} \frac{\sin(Q_{pn}l/2)}{(Q_{pn}l/2)} e^{i\frac{Q_{pn}l}{2}} = \frac{2}{n\pi} \sin(n\pi\delta) e^{in\pi\delta} \quad (4-13)$$

这便是人们熟知的周期结构的 Fourier 展开系数。我们也可以直接通过公式得到周期结构的 Fourier 级数展开:

$$\begin{aligned}
 f(Q_n) &= \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda f(x) e^{i \frac{2n\pi}{\Lambda} x} dx \\
 &= \frac{1}{in\pi} \left[e^{i \frac{2n\pi}{\Lambda} l} - 1 \right] = \frac{1}{in\pi} \left[\cos\left(\frac{2n\pi}{\Lambda} l\right) + i \sin\left(\frac{2n\pi}{\Lambda} l\right) - 1 \right] \\
 &= \frac{1}{in\pi} \left[-2 \sin^2\left(\frac{n\pi l}{\Lambda}\right) + i \sin\left(\frac{2n\pi l}{\Lambda}\right) \right] = \frac{2}{n\pi} \sin\left(\frac{n\pi l}{\Lambda}\right) \left[\cos\left(\frac{n\pi l}{\Lambda}\right) + i \sin\left(\frac{n\pi l}{\Lambda}\right) \right] \\
 &= \frac{2}{n\pi} \sin(n\pi\delta) e^{in\pi\delta}
 \end{aligned} \tag{4-14}$$

很显然，两种方法的结果是完全一致的，说明了推广的 Fibonacci 结构能够退化到周期结构。一般的参考文献中，定义与某一倒格矢相对应的有效非线性系数是不考虑指数因子的^[11]。

推广的 Fibonacci 结构的理论体系不仅能够退化到简单的周期结构，也可以推广到更为复杂的准周期结构。我们可以将这种推广分为三个层次：

我们知道，推广的 Fibonacci 序列迭代规则可用二阶矩阵 $\begin{bmatrix} m & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}$ 来表示，

$$\text{即 } \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} : A \rightarrow \underbrace{A \cdots A}_m B, B \rightarrow A, S_j = (mS_{j-1}) | S_{j-2} (j \geq 3), \lambda(m) = \frac{m + (4 + m^2)^{1/2}}{2}$$

是特征方程 $\lambda(m) \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} m & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix}$ 的根。它等于序列趋于无穷时，相邻两代基本单元数目的比值，也等于序列趋于无穷时，同一代推广的 Fibonacci 结构中 A 基本单元数目与 B 基本单元数目的比值，在这种情况下，这两个比值是相等的。

推广的第一个层次，仍然满足相邻两代基本单元数目的比值等于同一代序列中 A 基本单元数目与 B 基本单元数目的比值。这时迭代规则可用二阶矩阵 $\begin{bmatrix} m & 1 \\ s & 0 \end{bmatrix}$ 来表示。该矩阵的特征根 $\lambda(m, s) = \frac{m + (m^2 + 4s)^{1/2}}{2}$ 既是相邻两代基本单元数目的比值，也是同一代序列中 A 基本单元数目与 B 基本单元数目的比值。

推广的第二层次，最简单的迭代规则可用二阶矩阵 $\begin{bmatrix} m & n \\ 1 & 0 \end{bmatrix}$ 来表示。该矩阵的特征根为 $\lambda(m, n) = \frac{m + (m^2 + 4n)^{1/2}}{2}$ ，不等于同一代序列中 A 基本单元数目与 B 基本单元数目的比值。该比值满足方程：

$\gamma(m,n) = \frac{m\gamma(m,n)+1}{n\gamma(m,n)}$, $\gamma(m,n) = \frac{m+(4n+m^2)^{1/2}}{2n}$ 。两个比值的比例系数为 $1/n$ 。

第二层次更一般的讨论可以用一个更为普遍的二阶矩阵 $\begin{bmatrix} m & n \\ s & p \end{bmatrix}$ 或其他矩阵来表述两组元的准周期结构, 该矩阵的特征根为

$$\lambda = \frac{(m+p) + [4(ns-mp) + (m+p)^2]^{1/2}}{2} \quad (4-15)$$

该准周期结构中A基本单元数目与B基本单元数目的比值为

$$\gamma = \frac{(m-p) + [4ns + (m-p)^2]^{1/2}}{2n} \quad (4-16)$$

当 $p=0$ 及 $n=1$ 时, 这两个比值才是相等的。这两个层次均可以用一个二阶矩阵来表述准周期结构的迭代规律, 在投影方法中, 选取投影轴 ξ , 使得该投影轴与二维正方点阵的 x 轴的夹角 θ 满足:

$$\text{ctg}\theta = \gamma$$

二维正方点阵向该投影轴的投影就能得到二组元的准周期结构。Intergrowth 结构也属于这一层次的二组元准周期结构。

推广的第三层次, 不能用二阶矩阵表示二组元准周期结构的迭代规律, 我们可以通过A基本单元数目与B基本单元数目的比值 γ , 以 $1/\gamma$ 为斜率作投影直线, 二维正方点阵在该投影直线的投影就构成了新的准周期结构。这是推广的Fibonacci结构更广义上的推广。如投影角等于 $\pi/6$, 投影直线的斜率为 $\sqrt{3}/3$, A基本单元数目与B基本单元数目的比值等于 $\sqrt{3}$ 。这种准周期结构虽不存在递推公式, 我们仍可以通过投影的办法来得到该序列^[12]。

以上三个层次推广的准周期结构, 均可以用前面介绍的Fourier变换系数来确定准周期超晶格的有效非线性系数。只要改变各种不同的结构中两基本结构单元数目的比值及其相应的参量就可以得到有效非线性系数的解析表达式。

参考文献:

- [1] Zhu Y Y and Ming N B, Phys. Rev. B 42, 3676 (1990)
- [2] Merlin R, Bajema, K and Clarke R, Phys. Rev. Lett. 55, 1768 (1985)

- [3] Behrooz, A., Buboiss, M.J. et al., Phys. Rev. Lett. 386 (1986)
- [4] Gellermann W, Kohmoto M, Sutherland B and Taylor P.C , Phys. Rev. Lett. 72, 633 (1994)
- [5] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, Y.Q.Qin and N.B.Ming, Phys. Rev. Lett. 78. 2752(1997)
- [6] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming, Science 278, 843(1997)
- [7] 胡安, 蒋树声, 彭茹雯, 冯端, 物理学报 41 (1992) 63
- [8] 杨素霞 南京大学学士论文
- [9] J.Birch, M.Severin, U.Wahlstrom, Y.Yamamoto, G.Radnoczi, R. Riklund, J.E.Sundgren and L.R.Wallenberg Phys. Rev. B 41 10389(1990)
- [10] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, N.B.Ming, J.Appl.Phys 77, 5481(1995)
- [11] M.M.Fejer, G.A.Magel, et al IEEE J. Quant. Electron. 28, 2631 (1992)
- [12] 张超 南京大学学士论文

第五章 三组元准周期光学超晶格的三次谐波产生

近年来,准周期结构的主要研究工作都是基于 Fibonacci 序列及推广的 Fibonacci 序列,也有少数实验工作是基于非 Fibonacci 结构的,包括 Thue-Morse 结构和 Inter-Growth 结构以及由此推广出来的准周期结构。然而,所有上述结构都只包含两个基本长度单元 d_A 和 d_B 。随着对准周期结构研究的不断深入,人们开始研究多组元的准周期结构,本章提出了包含三个基本长度单元的三组元 Fibonacci 结构,并用数值 Fourier 变换和投影理论分析了三组元 Fibonacci 结构的非线性光学变频相应。

5-1 三组元 Fibonacci 结构和投影原理

一维 k 组元 Fibonacci 序列,由 k 个基本单元 A_1, A_2, \dots, A_k 构成,按照迭代规律 $A_1 \rightarrow A_1 A_k, A_k \rightarrow A_{k-1}, \dots, A_2 \rightarrow A_1$ 生成。考虑三组元的 Fibonacci 结构,基本单元定义为 A, B, C 。迭代规律 $A \rightarrow AC, C \rightarrow B, B \rightarrow A$,用 3×3 矩阵可表示为

$$\begin{pmatrix} A \\ B \\ C \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \\ C \end{pmatrix}$$

该迭代规律还可以描述成: $S_j = S_{j-1} + S_{j-3} \quad j \geq 4$, 其中 $S_1 = A, S_2 = AC, S_3 = ACB$

定义

$$\eta_1 = \lim_{j \rightarrow \infty} \frac{|A|_j}{|C|_j}, \quad \eta_2 = \lim_{j \rightarrow \infty} \frac{|B|_j}{|C|_j}, \quad \eta_3 = 1$$

$|A|_j, |B|_j, |C|_j$ 分别为 A, B, C 在 S_j 中出现的数目, η_1 是三阶矩阵的特征方程 $\lambda^3 - \lambda^2 - 1 = 0$ 的特征根。并且满足 $\eta_1 \eta_2 = 1$, 解该特征方程, η_1 和 η_2 可以分别得到:

$$\eta_1 = [\sqrt[3]{1/2 + (1/2)\sqrt{31/27}} + \sqrt[3]{1/2 - (1/2)\sqrt{31/27}}]^{-1}$$

$$\eta_2 = \sqrt[3]{1/2 + (1/2)\sqrt{31/27}} + \sqrt[3]{1/2 - (1/2)\sqrt{31/27}}$$

η_1 也等于三组元 Fibonacci 序列中相邻代序列基本单元数目的比值。从这个意义上来看, 三组元 Fibonacci 序列也属于第四章介绍的第一层次的准周期结构。

按照投影理论, 一维三组元准周期结构可以由三维空间的规则周期性点阵向一维空间投影得到, 如图5-1所示, 其倒格矢分布:

$$Q_{m,n,l} = 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l)$$

$$D = \eta_1 d_A + \eta_2 d_B + d_C$$

d_A, d_B, d_C 分别代表 A、B、C 基本单元的宽度, m, n, l 分别代表 Fourier 变换中峰的标志指标,

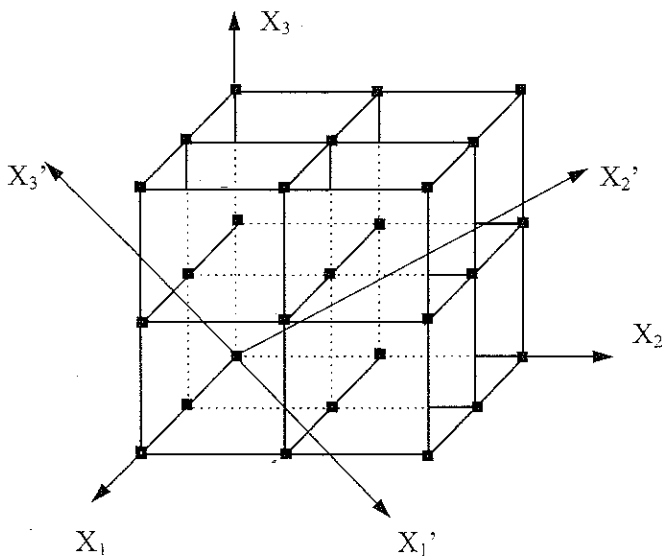


图5-1 三维立方点阵的投影示意图

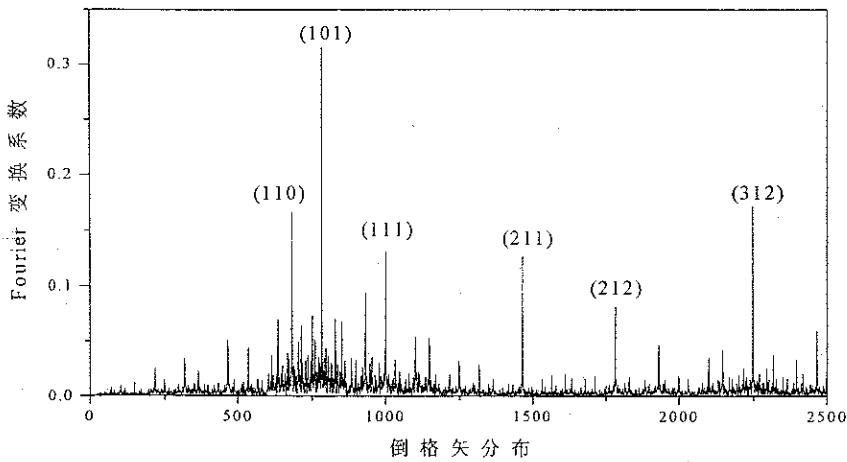


图5-2 三组元 Fibonacci 结构的 Fourier 变换谱

$\eta_1=1.4655712$, $\eta_2=0.6823277$, 我们可以用数值 Fourier 分析来得到有效非线性系数的结果。图 5-2 是用数值 Fourier 计算求得的三组元 Fibonacci 序列的 Fourier 变换系数。对应的具体参数为 $d_A=17.0\mu\text{m}$, $d_B=7.9\mu\text{m}$, $d_C=11.6\mu\text{m}$, $l=5.0\mu\text{m}$, $D=41.92\mu\text{m}$ 。

5-2 准位相匹配条件下的谐波输出

为了得到高效的激光变频效应, 必须选取入射波的波长使之同时满足二次谐波、三次谐波的准位相匹配条件。即:

$$\Delta k_1 = G_{m,n,l}, \Delta k_1 = G_{m',n',l'}$$

$$G_{m,n,l} = 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l)$$

$$D = \eta_1 d_A + \eta_2 d_B + d_C$$

选定两个倒格矢 $G_{m,n,l}$ 和 $G_{m',n',l'}$ 使它们分别匹配倍频过程与和频过程。即:

$$\frac{2(n(2) - n(1))}{3n(3) - 2n(2) - n(1)} = \frac{m\eta_1 + n\eta_2 + l}{m'\eta_1 + n'\eta_2 + l'}$$

选定一组倒格矢 $G_{m,n,l}$ $G_{m',n',l'}$ 可以确定基波的波长, 再根据确定的基波波长由方程 $\Delta k_1 = \frac{2\pi(m\eta_1 + n\eta_2 + l)}{D}$ 求得结构参数 D , 此时, 倍频、和频同时满足

准位相匹配, 能够产生高效的三次谐波输出。对于原始的三组元 Fibonacci 结构, 各结构参数可以唯一确定:

$$d_C = \frac{D}{\eta_1^2 + \eta_2^2 + 1}, d_B = \eta_2 d_C, d_A = \eta_1 d_C$$

对于非原始的三组元 Fibonacci 结构, d_A, d_B, d_C 有更多的选择可能。从图 5-2 可以看到: (110), (101), (111), (211), (212), (312) 对应于较大的 Fourier 变换系数, 也是我们在实验设计中应该选取的倒格矢。另一方面, 在变频转换过程中, 由于倍频的相干长度大于和频的相干长度, 小指标代表的倒格矢总是来实现倍频过程的准位相匹配, 而大指标所代表的倒格矢用来实现和频过程的准位相匹配。下面是我们采用上述方法在小信号近似下二次谐波、三次谐波输出的计算结果。

图 5-3 选用的倒格矢为 (110) 和 (212), 具体参数为: $d_A=18.8\mu\text{m}$, $d_B=8.7\mu\text{m}$, $d_C=12.8\mu\text{m}$, $l=6.0\mu\text{m}$, $D=46.3\mu\text{m}$, 基波波长为 $1.574\mu\text{m}$ 。