

图 5-4 选用的倒格矢为 (101) 和 (312), 具体参数为:  $d_A=17.0\mu\text{m}$ ,  $d_B=7.9\mu\text{m}$ ,  $d_C=11.6\mu\text{m}$ ,  $l=5.0\mu\text{m}$ ,  $D=41.8\mu\text{m}$ , 基波波长为  $1.414\mu\text{m}$ 。

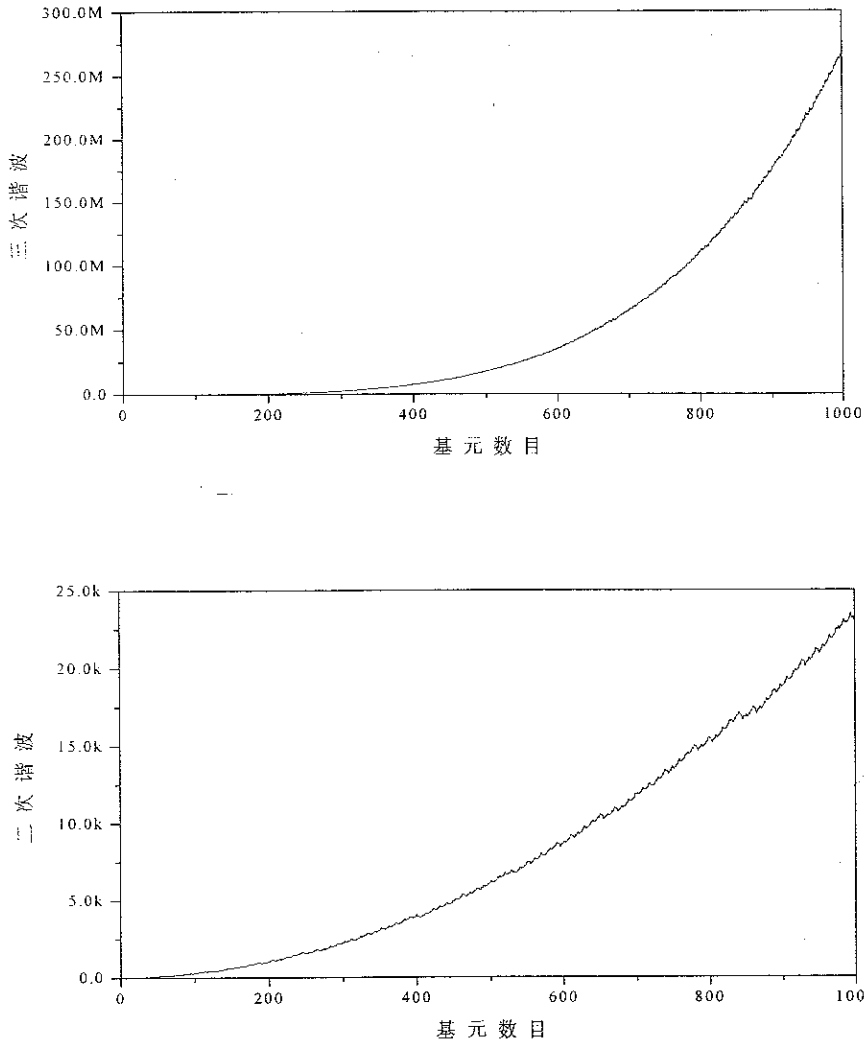


图 5-3 准位相匹配条件下三组元的二次、三次谐波输出

可以明显地看到, 图5-4所对应的三次谐波相对强度比图5-3对应的相对强度高出了近五十倍。这一结果主要是由于参与准位相匹配的倒格矢所对应的有效非线性系数的差异而引起的, 对于(101), (312)倒格矢,  $d_{\text{eff}}(101)/d_{33} = 0.3241$  用于倍频,  $d_{\text{eff}}(312)/d_{33} = 0.1639$  用于和频, 对于(110), (212)倒格矢,  $d_{\text{eff}}(101)/d_{33} = 0.1858$  用于倍频,  $d_{\text{eff}}(212)/d_{33} = 0.0704$  用于和频。可以看出, 应

用倒格矢(101),(312)其有效非线性系数明显提高,因而也导致了二次谐波、三次谐波输出的明显增强。

在三组元Fibonacci光学超晶格的具体设计中,具体的结构参数对于高效的谐波输出是十分重要的,三组元的Fibonacci准周期结构具有比二组元Fibonacci准周期结构更多的可调节结构参数,不仅可以选择不同的基本单元的宽度:  $d_A$ 、 $d_B$ 、 $d_C$ ,而且还可以调节正畴的宽度 $l$ ,既可以选择各基本单元相同的正畴宽度,也可以选择各基本单元不同的正畴宽度,如此众多的调节参数对于我们的具体实验设计是十分有利的。

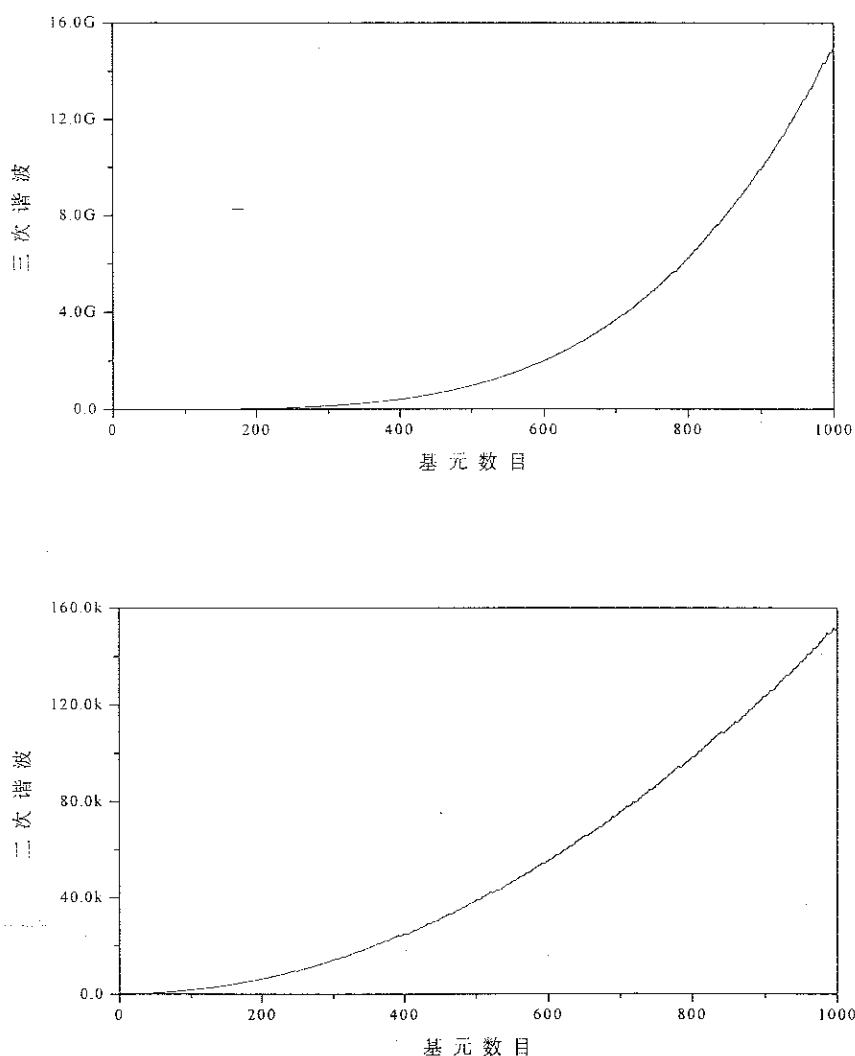


图5-4 准位相匹配条件下三组元的二次、三次谐波输出

多组元 Fibonacci 准周期结构有着比二组元 Fibonacci 准周期结构更多的结构特性和更广泛的应用前景, 已经在一维电子谱<sup>[2]-[3]</sup>和极化声子色散关系<sup>[4]</sup>的研究、金属超晶格的研究中取得了重要进展<sup>[1],[5]</sup>, 多组元 Fibonacci 准周期光学超晶格深入的理论和实验工作正在进行之中。

#### 参考文献:

- [1] 胡安, 蒋树声, 彭茹雯, 冯端, 物理学报 41 (1992) 63
- [2] Y.Liu, X.Fu, H.Han, B.Cheng and C.Luan, Phys. Rev. B43 (1991) 13420
- [3] W.Deng, S.Wang, Y.Liu, D.Zheng and N.Zou, Phys. Rev. B36 (1993) 5653
- [4] M.Cai, Y.Liu and W.Deng, Phys. Rev. B49 (1994) 5429
- [5] Jiang S. S, Hu, A. et al., J. Appl. Phys. 66 (1989) 5258

## 第六章 耦合参量过程的微结构与 复合准位相匹配理论

当今凝聚态物理学的发展方向之一是从研究均匀材料,逐步向研究微观结构材料中的物理过程和特殊效应发展。微结构材料的研究与应用包含了两个研究阶段,初级的研究阶段是从现存的材料出发来研究其结构和性质,或者从现有的结构序列出发,制备相应的微结构材料,探索其可能的应用前景;高级的研究阶段则是从特定的应用需求出发,确定相应的材料与结构,去设计和制备一些自然界并不存在的新结构和新材料,从而拓宽微结构材料的应用范围。准位相匹配理论在准周期光学超晶格中的应用为光学变频效应开辟了新的研究领域。基于准位相匹配理论的准周期光学超晶格中的耦合参量过程研究也同样包含两个阶段。通常的研究模式是对现有的准周期结构,利用准周期结构的倒格矢分布及其有效非线性系数的性质,实现特定的可以实用化的耦合参量过程,1996年,我们研究小组在一块晶体中实现了高效的多波长二次谐波输出和高效的三次谐波输出<sup>[1]-[2]</sup>,这一突破为在光集成器件中实现光学变频提供了有效途径。然而,对于一般的准周期结构,包括我们已经介绍的Fibonacci准周期结构和推广的Fibonacci准周期结构,为了获得高效的三次谐波输出,必须同时满足倍频(SHG)及和频(SFG)过程的准位相匹配,这就限制了能够产生高效三次谐波的基波波长。因此,通常的研究模式对准周期光学超晶格耦合参量过程的应用范围有很大的限制。为了弥补这一不足,我们根据微结构设计的原理提出新的研究思路,即从特定的耦合参量过程出发,设计出新的准周期和其他非周期结构,基于这一想法提出的复合准位相匹配理论,能够在实际应用所需要的任何波长产生高效的二次、三次谐波输出。基本框架就是在周期、准周期结构的基础上,迭加新的周期、准周期结构,形成了新的复合准位相匹配。这种周期--周期、周期--准周期混合结构对于在任何基波波长产生高效的三次谐波输出具有十分重要的意义。本章首先介绍了周期结构中三次谐波产生,重点介绍了复合准位相匹配理论,然后应用复合准位相匹配理论,研究了周期--周期、周期--准周期混合结构中任意波长的二次谐波、三次谐波产生及其规律。

### 6-1 周期光学超晶格中三次谐波产生

蓝、绿光倍频一直是人们用来产生短波长激光光源的有效技术手段之一<sup>[3]-[5]</sup>，对于高度集成、高速度、大容量等器件性能的实现具有十分重要的意义。另一方面，周期结构的光学超晶格是实现准位相匹配二次谐波输出的理想微结构材料。应该说，一阶QPM对应于最大的有效非线性系数和最高的倍频效率，但它所需要的周期最小，对于0.8μm近红外光倍频的一阶准位相匹配周期约为3μm，用室温极化技术制备这么小周期的光学超晶格有一定的难度。因此，用周期结构光学超晶格的三次谐波产生高效的蓝、绿光是解决这一困难的有效途径之一。

在一维光学超晶格中，周期结构是最简单也是最常见的一种。它由许多个完全相同的结构单元重复排列而成，通常可用AAAA...来表示。其中A表示基本的结构单元。对于简单周期结构，每个单元A是由一块正畴和一块负畴组成的。根据正负畴的长度是否相等又可以分为等长周期结构及不等长周期结构。通常用占空比来表述这一特征。

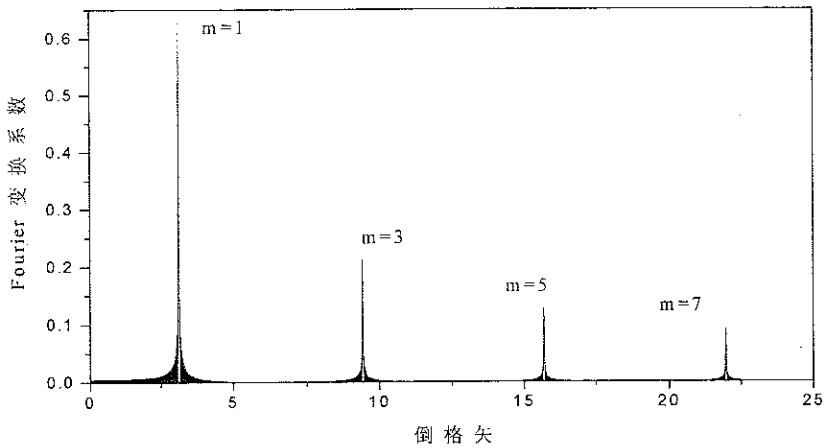


图6-1 简单周期结构的倒格矢

周期结构倒格矢的位置为

$$G_m = 2\pi D^{-1}m, m=1, 2, 3, \dots$$

归一化后倒格矢的高度即有效非线性系数的权重为

$$g_m = \frac{2}{m\pi} \sin\left(\pi m \frac{l}{D}\right) \tag{6-1}$$

其中 $D$ 为每个结构单元的长度,也就是周期超晶格的周期。 $l/D$ 是该周期结构的占空比,对于正负畴等长周期结构, $D=2l$ ,此时其倒格矢仅当 $m$ 为奇数时有峰,当 $m$ 为偶数时峰高为0,这实际上是一种消光现象。简单周期结构倒格矢峰的数量很少,但高度较大。其对应的各阶有效非线性系数大小之比为 $1:\frac{1}{3}:\frac{1}{5}:\dots\dots$ ,

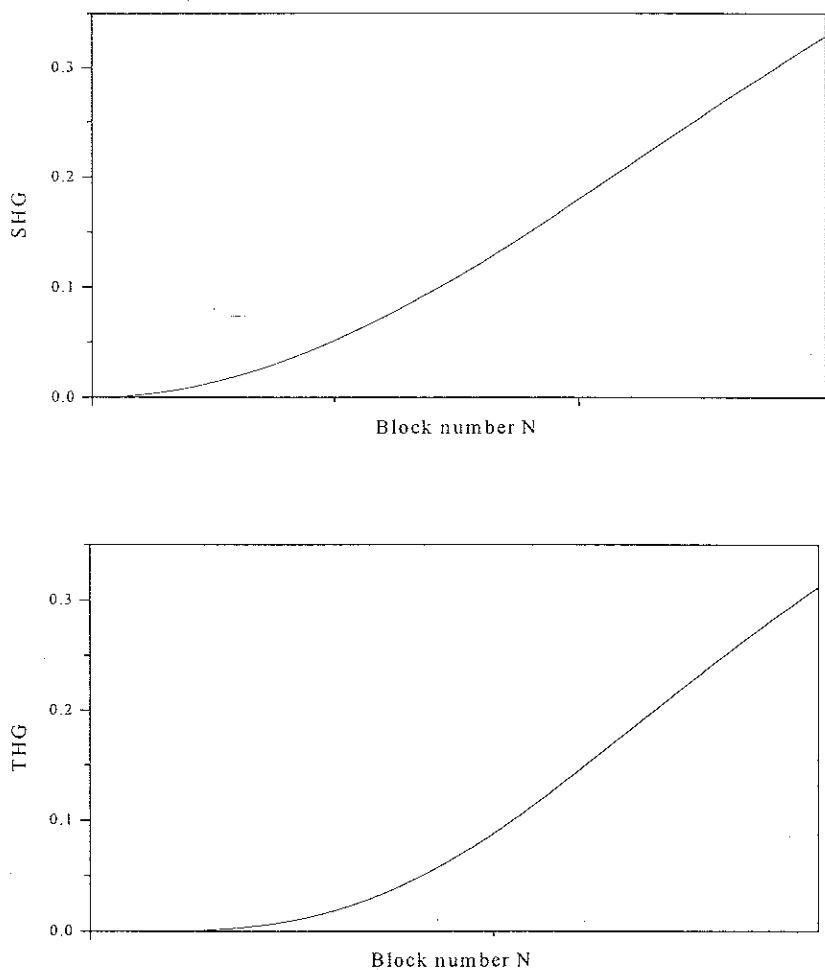


图6-2 准位相匹配条件下的二次、三次谐波输出  
基波波长 $\lambda=1.3369\mu\text{m}$ , 周期 $D=14.8\mu\text{m}$ , 占空比 $\delta=0.5$

为了获得高效的三次谐波输出,必须同时有两个倒格矢来补偿倍频及和频过程中的位相失配。很显然,最佳也是最简单的选择是 $G_1=2\pi D^{-1}$ 用来实现倍频过程的准位相匹配, $G_3=6\pi D^{-1}$ 用来实现和频过程的准位相匹配,由表达式

$$\frac{2(n(2)-n(1))}{3n(3)-2n(2)-n(1)} = \frac{1}{3} \quad (6-2)$$

可以确定同时满足倍频及和频准位相匹配的基波波长。图 6-2 是同时满足倍频及和频准位相匹配条件下的 SHG、THG 输出，基波波长为  $1.3369\mu\text{m}$ ， $D=14.8\mu\text{m}$  为两倍的二次谐波相干长度，可以看出，SHG、THG 随结构单元的数目单调增长。在这种情况下，能够获得高效的三次谐波的蓝光输出。图 6-3 是周期结构中二次谐波输出光强随倒格矢的变化曲线，具体结构参数与图 6-2 相同，可以看出，二次谐波光强频谱曲线与图 6-1 的 Fourier 变换谱有相似的变化规律。可以看出，图 6-3 的二次谐波转换效率并不满足  $1:1/9:1/25\dots$  也不满足  $1:1/3:1/5\dots$ 。这是因为只有在小信号近似下，二次谐波转换效率才与有效非线性系数的平方成正比，当光学超晶格的长度较长时，小信号近似不再成立，转换效率持续增长并趋于饱和，最终均能趋于 100% 的转换效率。

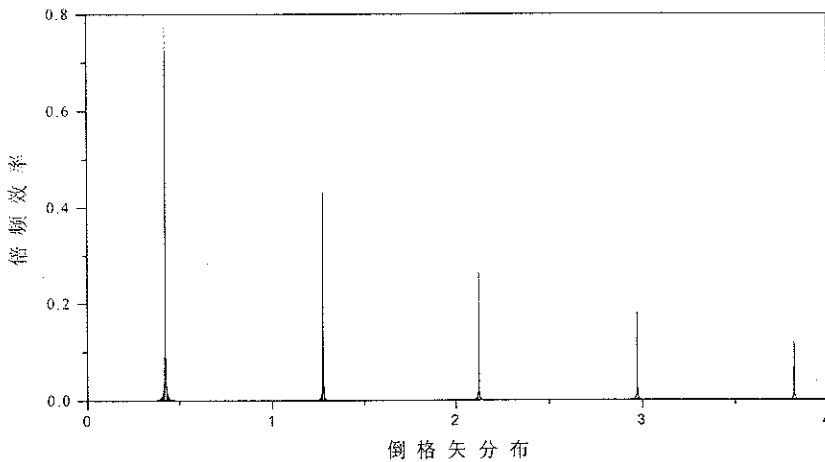


图 6-3 准位相匹配条件下的二次谐波随倒格矢的变化曲线

周期结构的超晶格制备仍采用室温脉冲电压极化方法，图 6-4 是用浸蚀法显示的超晶格的光学显微照片。图 6-4 (a)、(b) 分别对应于  $+c$  面、 $-c$  面腐蚀后的光学显微照片。

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 Continuum 公司生产的锁模 Nd-YAG 激光器，输出波长  $355\text{nm}$ ，脉宽  $15\text{ps}$ ，重复频率  $10\text{Hz}$ 。OPA 为中国科学院物理研究所生产的可调谐光参量放大器。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  $e^\omega \cdot e^\omega \rightarrow e^{2\omega}$  和  $e^\omega \cdot e^{2\omega} \rightarrow e^{3\omega}$  方式来实现。透镜焦距等于15cm。

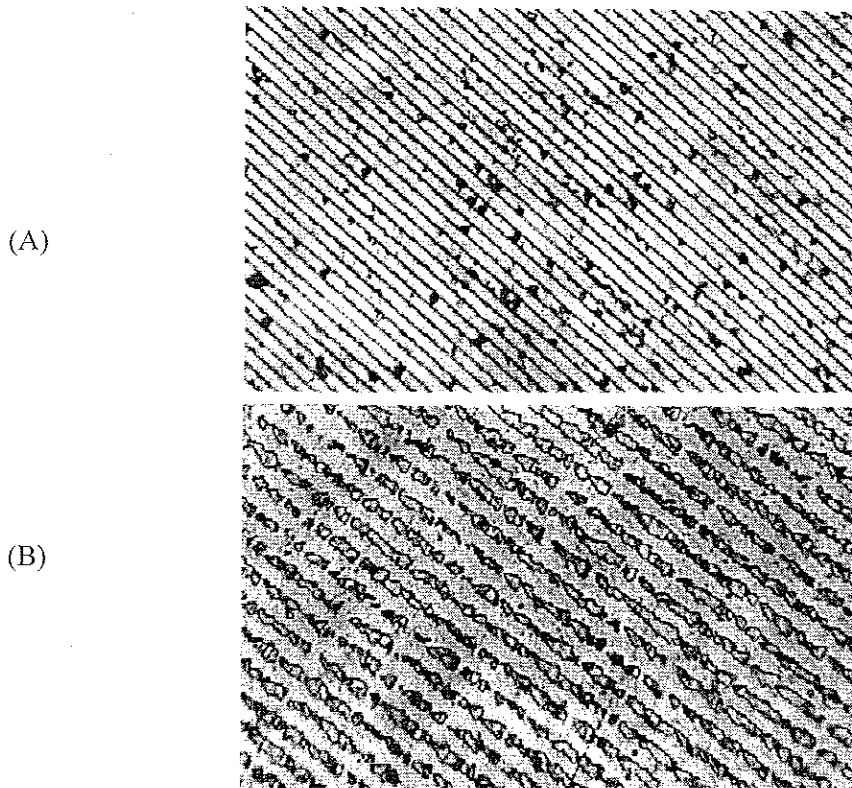


图6-4 周期光学超晶格腐蚀后的光学显微照片(a)对应于+c面(b)对应于-c面

## 6-2 复合准位相匹配理论

准位相匹配理论的基本内容是利用人工调制的周期、准周期结构中的倒格矢分布来匹配谐波产生过程中的位相失配，达到谐波产生的同位相输出，获得高效的谐波输出。为了产生高效的三次谐波输出，我们通常选取两个具有较大有效非线性系数的倒格矢来匹配倍频及和频产生过程中的位相失配。然而，这样的选取所对应的基波波长是唯一的，如果基波波长偏离所选取的数值，就会导致倍频或和频过程中的位相失配(波矢失配)，也就不能获得高效的三次谐波输出。

复合准位相匹配理论的基本思路就是对于任意的基波波长，选取其周期或准周期结构的结构参数使得该结构中倍频过程及和频过程产生的波矢失配大小相等，方向相反。在这种情况下，二次谐波输出是等振幅或

变振幅周期振荡的, 而由于倍频与和频的波矢失配相等, 三次谐波输出是在轻微振荡中增长的。然后, 根据二次谐波输出的振荡周期, 对原周期或准周期结构进行周期调制, 其结果是二次谐波光强的输出持续增长, 二次谐波光强的持续增长最终带来了三次谐波光强的高效输出。

下面我们给出复合准位相匹配理论的数学表示。

对于周期结构, 若  $\Delta k_1$ 、 $\Delta k_2$  分别代表倍频及和频过程中的波矢失配, 则倍频及和频的相干长度  $l_{2c}$  及  $l_{3c}$  可以通过下面的方程求出:

$$\Delta k_1 l_{2c} = \pi \text{ 和 } \Delta k_2 l_{3c} = \pi \quad (6-3)$$

如果用  $G_m$  实现倍频的准位相匹配, 用  $G_n$  实现和频的准位相匹配, 则基波波长所对应的倍频及和频相干长度  $l_{2c}$  及  $l_{3c}$  满足方程  $l_{2c}/l_{3c} = n/m$ 。该周期结构对应的正、负畴宽度满足方程

$$\Delta k_1 - G_m = G_n - \Delta k_2 = 0 \text{ 或 } \Delta k_1 l - m\pi = n\pi - \Delta k_2 l = 0 \quad (6-4)$$

即  $l = m l_{2c} = n l_{3c}$ 。很显然, 如果产生三次谐波的谐波波长任意选定, 上述方程将不再满足,  $G_m$  和  $G_n$  将不能用来匹配倍频及和频过程中的波矢失配,

这时, 如果正、负畴宽度满足方程

$$\Delta k_1 - G_m = G_n - \Delta k_2 \neq 0 \text{ 即 } \Delta k_1 l - m\pi = n\pi - \Delta k_2 l \neq 0$$

满足倍频过程中的波矢失配与和频过程中的波矢失配大小相等, 方向相反。可以求出  $l$  的大小

$$l = \frac{(m+n)\pi}{\Delta k_1 + \Delta k_2} = \frac{(m+n)\lambda}{6(n_3 - n_1)} \quad (6-5)$$

以  $2l$  为周期的光学超晶格, 其二次谐波是周期振荡的。三次谐波的产生满足耦合方程:

$$\frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 e^{i(\Delta k_2 - G_n)x} \quad (6-6)$$

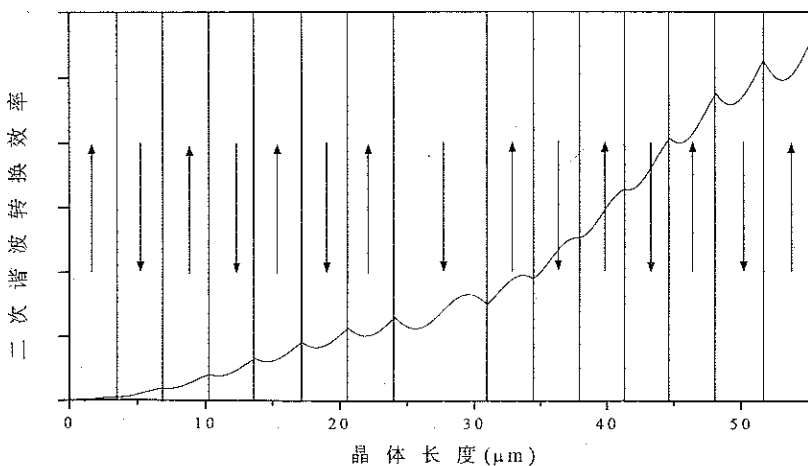
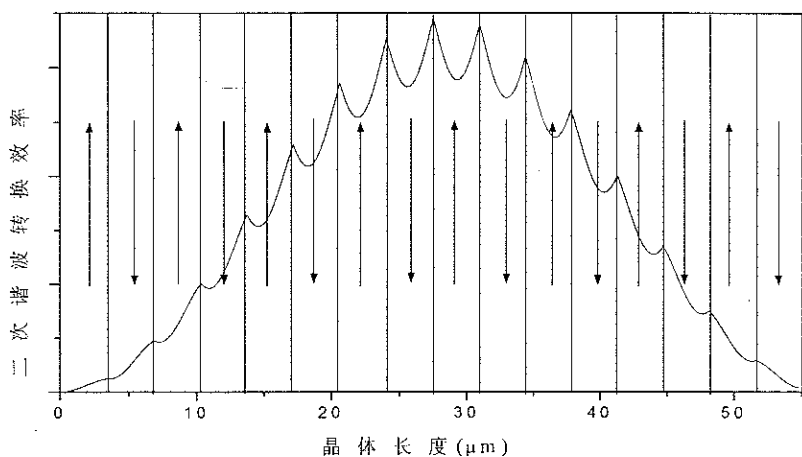
由于  $A_2$  是周期振荡的, 对其作 Fourier 变换, Fourier 变换提供的广义倒格矢与周期结构的倒格矢  $G_n$  一起恰好能够匹配三次谐波产生过程中的和频位相失配  $\Delta k_2$ , 导致三次谐波输出在轻微振荡中增长。为了二次谐波光强也能够持续增长, 我们以二次谐波的振荡周期来调制原来的周期结构, 这样就构成了周期--周期结构, 新的调制周期为

$$L = \frac{2\pi}{|G_m - \Delta k_1|} = \frac{2\pi}{|\Delta k_2 - G_n|} \quad (6-7)$$

三次谐波的产生满足新的耦合方程

$$\frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 g(x) A_1 A_2 e^{i(\Delta k_2 - G_n)x} \quad (6-8)$$

在新的周期-周期结构中，二次谐波  $A_2$  是持续增长的，耦合系数  $\kappa_2$  迭加了与原来的二次谐波光强振荡周期相同周期的函数  $g(x)$ ，在这种情况下，周期函数  $g(x)$  提供的倒格矢与原周期函数提供的倒格矢一起匹配三次谐波产生过程中的和频位相失配，使得二次、三次谐波均能够满足准位相匹配条件下的持续增长。其示意图如 6-5 所示。从示意图中基本单元的谐波变化曲线可以看出，原周期结构中倍频过程实现的是一阶准位相匹配，和频过程实现的是三阶准位相匹配。这种新型的周期-周期结构可以对于实际需要的任意基波波长产生高效的三次谐波输出，它是准位相匹配理论的一次质的飞跃，称之为复合准位相匹配理论。



对于准周期结构, 也同样能够推导出复合准位相匹配理论的框架。若  $\Delta k_1$ 、 $\Delta k_2$  分别代表倍频及和频过程中的波矢失配,  $G_{m,n}$  和  $G_{p,q}$  分别匹配倍频及和频过程, 即

$$\Delta k_1 - G_{m,n} = G_{p,q} - \Delta k_2 = 0 \text{ 或}$$

$$\Delta k_1 l - \frac{m+n\tau}{1+\tau} \pi = \frac{p+q\tau}{1+\tau} \pi - \Delta k_2 l = 0 \quad (6-9)$$

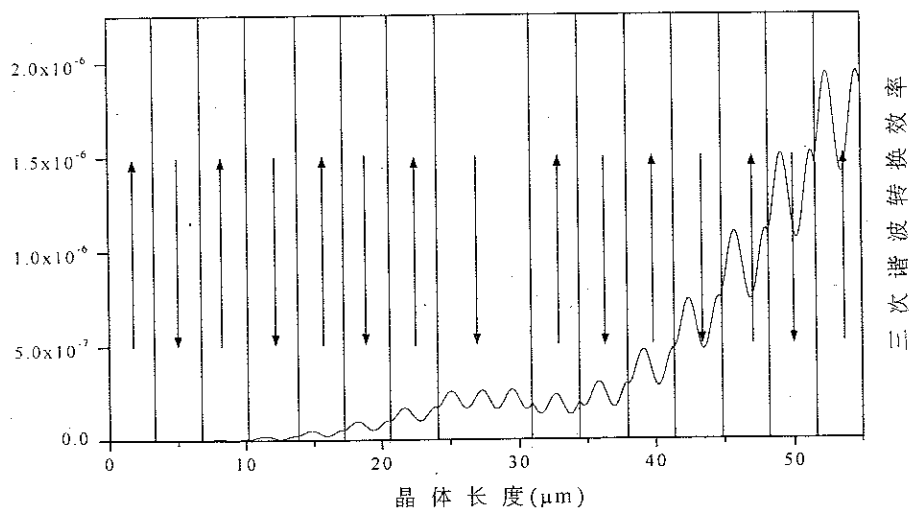
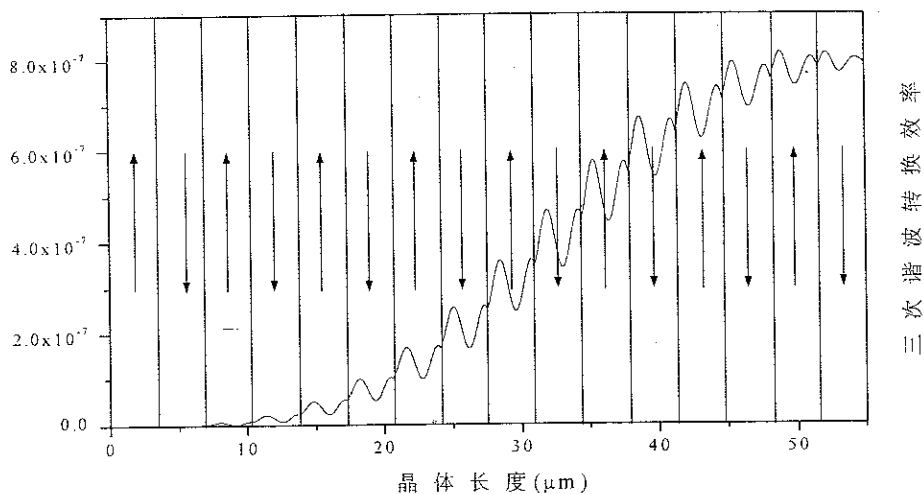


图 6-5 复合准位相匹配理论示意图 (a) 周期结构中的二次谐波转换效率  
 (b) 迭加新的调制周期后的二次谐波转换效率  
 (c) 周期结构中的三次谐波转换效率  
 (d) 迭加新的调制周期后的三次谐波转换效率

其中  $2l = \frac{D}{1+\tau}$ 。

$D$  为准周期结构的结构参数,  $D = \tau l_A + l_B$ 。

$$l = \frac{m+n\tau}{1+\tau} l_{2C} = \frac{p+q\tau}{1+\tau} l_{3C} \quad (6-10)$$

同样, 如果产生三次谐波的谐波波长任意选定,  $G_{m,n}$  和  $G_{p,q}$  将不能用来匹配倍频及和频过程中的波矢失配, 这时, 如果正、负畴宽度满足方程

$$\Delta k_1 - G_{m,n} = G_{p,q} - \Delta k_2 \neq 0$$

此时, 满足倍频过程中的波矢失配与和频过程中的波矢失配大小相等, 方向相反。可以求出  $l$  的大小:

$$l = \frac{(m+n\tau+p+q\tau)\pi}{(\Delta k_1 + \Delta k_2)(1+\tau)} = \frac{(m+n\tau+p+q\tau)\lambda}{6(n_3 - n_1)(1+\tau)} \quad (6-11)$$

若准周期结构的参数  $l_A, l_B$  满足:

$$\frac{\tau l_A + l_B}{1+\tau} = 2l$$

$l$  也是正畴的宽度。以这种结构参数构成 Fibonacci 准周期光学超晶格, 其二次谐波是变振幅周期振荡的, 它的振荡周期提供的倒格矢与准周期结构提供的倒格矢一起恰好能匹配三次谐波产生过程中的和频位相失配, 导致三次谐波输出在轻微振荡中增长。为了二次谐波光强也能够持续增长, 我们以二次谐波的振荡周期来调制原来的准周期结构, 这样就构成了周期-准周期结构, 新的调制周期为

$$L' = \frac{2\pi}{|G_{m,n} - \Delta k_1|} = \frac{2\pi}{|\Delta k_2 - G_{p,q}|} \quad (6-12)$$

在这种新的周期-准周期结构中, 新的调制周期提供的倒格矢与准周期结构提供的倒格矢一起共同匹配二次、三次谐波产生过程中的倍频与和频失配, 实现二次、三次谐波的高效输出。复合准位相匹配理论在周期-准周期结构的应用, 是准周期结构中准位相匹配理论的重大突破, 对于三次谐波发生器件的研制具有重要意义。

### 6-3 复合准位相匹配理论在周期结构中的应用

众所周知, Nd-YAG 激光器能够产生波长为  $1.064\mu\text{m}$  的光源, 因此如果能够产生基波光源为  $1.064\mu\text{m}$  的 UV 三次谐波, 是非常具有实用价值的, 然而, 长期以来, 由于未能找到合适的准周期结构, 无法对于基波光源  $1.064\mu\text{m}$  实现高效的三次谐波输出。我们可以根据复合准位相匹配理论来完成这一工作。依照公式

$$l = \frac{(m+n)\pi}{\Delta k_1 + \Delta k_2} = \frac{(m+n)\lambda}{6(n_3 - n_1)} \quad (6-13)$$

一般情况下,  $m=1, n=3$ , 即分别用  $G_1, G_3$  来匹配倍频及和频过程中的位相失配, 对于基波波长  $1.064\mu\text{m}$ , 可求得  $l=3.44\mu\text{m}$ , 很显然,  $l$  介于倍频的相干长度与和频的相干长度之间 ( $l_{2c}=3.9\mu\text{m}, l_{3c}=1.1\mu\text{m}$ ), 以  $2l$  为周期的光学超晶格其二次谐波输出光强曲线, 呈现出周期振荡的规律, 三次谐波输出光强总体上呈现出增长态势, 并伴有台阶出现。其变化曲线如图 6-6 所示。

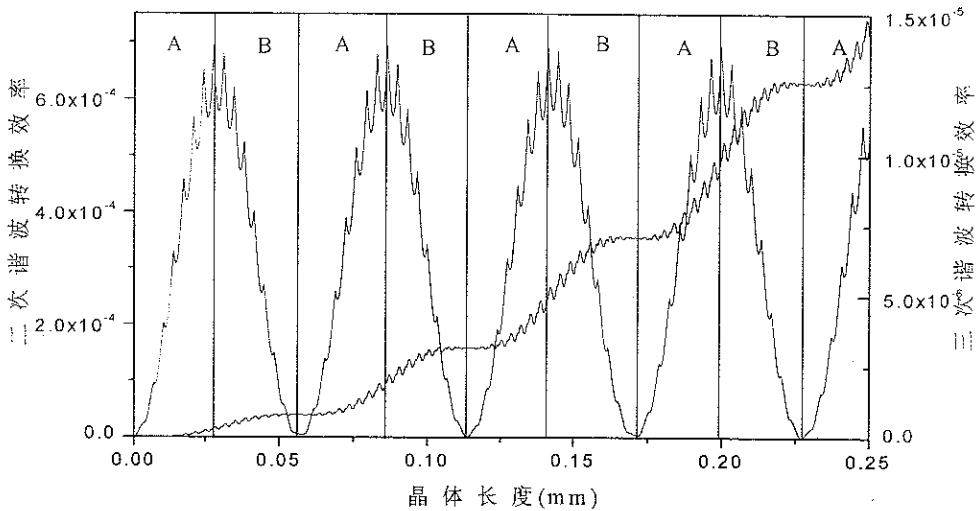


图6-6 以  $2l$  为周期的光学超晶格中的二次谐波、三次谐波转换效率及调制结构中迭加结构因子  $g(x)$  的示意图

新的调制周期相当于在原周期结构的振幅耦合方程中添加另一结构因子  $g(x)$ , 当二次谐波增加时(图 6-6 中 A 区域),  $g(x)=1$ , 原周期结构的正负畴区域保持不变。当二次谐波减小时(图 6-6 中 B 区域),  $g(x)=-1$ , 原周期结构的正畴变为负畴, 负畴变为正畴。在我们的设计中, 新的调制周期即二次谐波的振荡周期为  $L' = \frac{2\pi}{G_1 - \Delta k_1} = \frac{2\pi}{\Delta k_2 - G_3} = 56.8\mu\text{m}$ , 相当于 8.26 个基本单元, 即

半周期为4.13个基本单元,二次谐波的峰值不在畴界处。在实际操作中,当二次谐波的峰值出现在第n个基本单元的正畴部分,以第n-1个基本单元和第n个基本单元的分界处作为峰值的位置迭加新的结构因子g(x)。当二次谐波的峰值出现在第n个基本单元的负畴部分,以第n个基本单元和第n+1个基本单元的分界处作为峰值的位置迭加新的结构因子g(x)。即采取四舍五入的方法,由此所产生的误差在总体上统计平均接近于零。

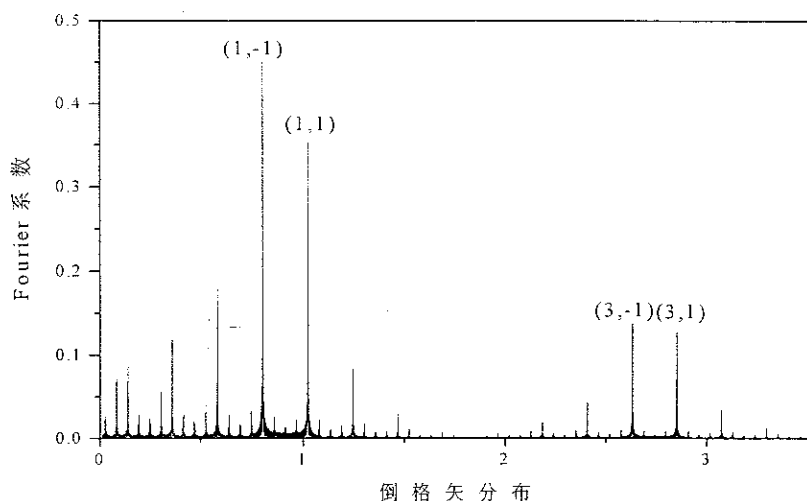


图 6-7 周期--周期混合结构的 Fourier 变换曲线

理论表明,周期---周期结构的倒格矢是各周期结构倒格矢之和,即  $\Omega = G_m + G_n'$ ,

$\Omega$  代表周期---周期混合结构的倒格矢,  $G_m$  为原始周期的倒格矢,  $G_n'$  为调制周期的倒格矢,在我们的设计中,

$\Omega_{1,-1} = G_1 - G_1' = \Delta k_1$  用于倍频过程的准位相匹配,

$\Omega_{3,1} = G_3 + G_1' = \Delta k_2$  用于和频过程的准位相匹配,即所谓 1;-1 耦合和 3;1 耦合。它们所对应的有效非线性系数分别为  $\Psi_{1,-1}$  和  $\Psi_{3,1}$ 。

图 6-7 是周期---周期混合结构的 Fourier 变换谱曲线,其倒格矢的位置和 Fourier 变换系数(超晶格的有效非线性系数)与我们的理论估计是基本一致的。混合结构倒格矢所对应的 Fourier 变换系数应等于参与合成的倒格矢所对应的 Fourier 变换系数的乘积,  $\Psi_{m,n} = d_m d_n$ , 即  $\Psi_{1,1}$  与  $\Psi_{1,-1}$  及  $\Psi_{3,1}$  与  $\Psi_{3,-1}$  的绝对值大小应该是相等的,在 Fourier 变换的图 6-7 中,我们明显地看出对应的 Fourier 变换系数的差异,其误差原因将在下面作详细讨论。图 6-8 是周期---

周期混合结构的二次谐波和三次谐波光强输出，它们均随着超晶格的晶体长度持续、稳定增长。我们计算并比较了原周期结构的二次谐波谱(图6-9(a))和经过调制后的周期--周期结构的二次谐波谱(图6-9(b))，可以看到根据复合准位相匹配理论设计的周期--周期结构已将原周期结构中的二次谐波峰移到事先确定的基波波长的位置，周期--周期结构的倒格矢耦合过程最终导致了二次谐波峰的双向分裂。图6-10是用浸蚀法显示的光学超晶格的光学显微照片。从图6-10中可以清楚地观察到存在着周期分布的正畴和负畴区域。

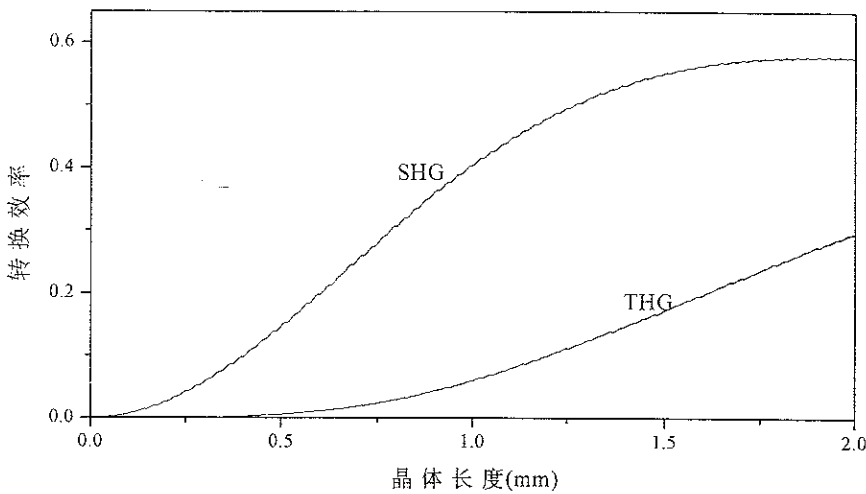


图6-8 周期--周期混合结构的二次谐波和三次谐波光强输出

#### 6-4 复合准位相匹配理论在准周期结构中的应用

准位相匹配理论在准周期光学超晶格中的应用为高效高次谐波的产生开辟了一个全新的研究方向，为了能够在任意基波波长产生高效的高次谐波，复合准位相匹配理论也同样可以应用于准周期结构。当同时满足倍频及和频过程中的准位相匹配时，倍频及和频的相干长度满足方程：

$$(m+n\tau)l_{2c} = (p+q\tau)l_{3c} \quad (6-14)$$

当  $m$ ,  $n$ ,  $p$ ,  $q$  确定后，只有某一基波波长满足该方程。随着基波波长的变化，一般条件下，上面的等式得不到满足，为了在某一特定的基波波长

产生高效的谐波输出, 可以根据复合准位相匹配理论进行准周期光学超晶格的结构设计。 $l$  的大小可通过公式求出:

$$l = \frac{(m+n\tau+p+q\tau)\pi}{(\Delta k_1 + \Delta k_2)(1+\tau)} = \frac{(m+n\tau+p+q\tau)\lambda}{6(n_3 - n_1)(1+\tau)} \quad (6-15)$$

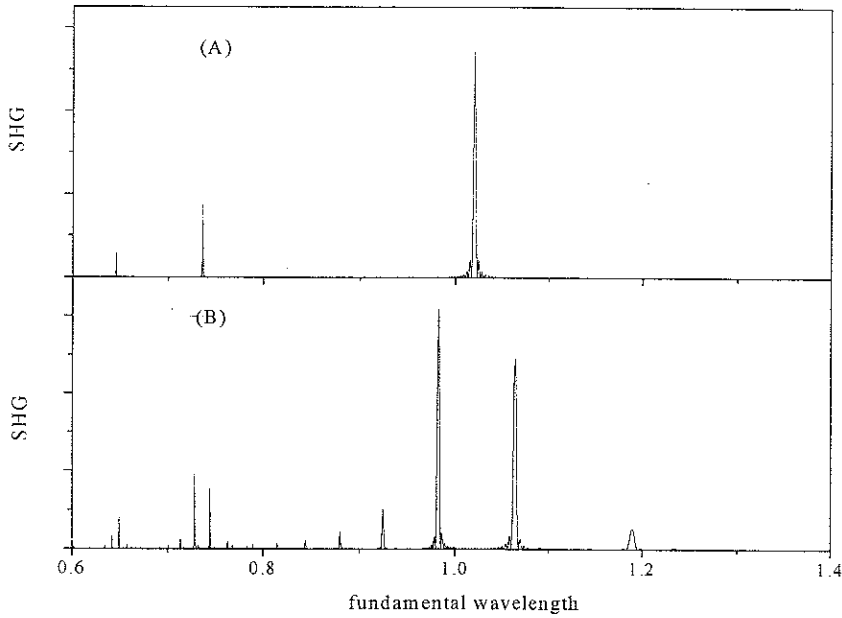


图6-9 二次谐波与基波波长的关系曲线

(a)对应于原周期结构(b)对应于调制后的周期--周期结构

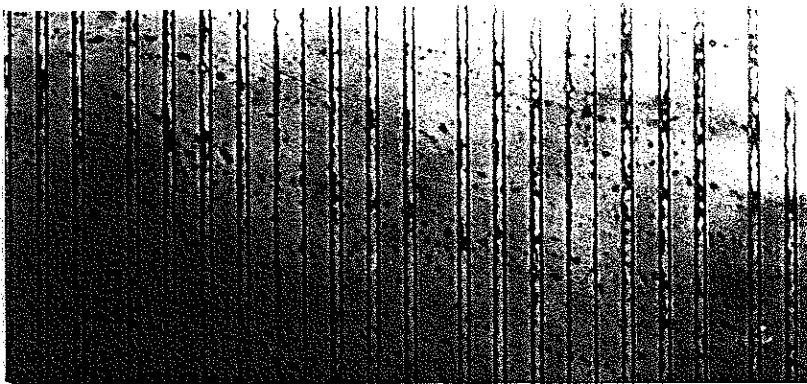


图6-10 浸蚀法显示的周期--周期光学超晶格的显微照片

假定基波波长  $\lambda = 1.4580\mu\text{m}$ , 设所选取的倒格矢指数  $m=1, n=1, p=2, q=3$ , 由公式 (6-15) 可计算出  $l$  的值为  $8.7\mu\text{m}$ , 此时的  $l$  值介于倍频的相干长度与和频的相干长度之间 ( $l_{2C} = 9.14\mu\text{m}, l_{3C} = 3.27\mu\text{m}$ ) 以  $2l$  为平均周期设计新的 Fibonacci 准周期光学超晶格, 准周期结构的参数  $l_A, l_B$  满足:

$$\frac{\tau l_A + l_B}{1 + \tau} = 2l \quad (6-16)$$

在我们的设计中,  $l_{A1} = l_{B1} = l = 8.7\mu\text{m}, l_{A2} = 10.3\mu\text{m}, l_{B2} = 6.1\mu\text{m}, l_A/l_B \approx 1.3$ 。图 6-11 以  $2l$  为平均周期的 Fibonacci 准周期光学超晶格的二次谐波输出光强, 呈现出周期振荡的规律, 但振荡的振幅是变化的, 三次谐波输出光强也如图 6-12 所示, 总体上呈现出增长态势。根据二次谐波的振荡周期, 对准周期结构进行周期调制, 调制周期为  $L' = \frac{2\pi}{|G_{m,n} - \Delta k_1|} = \frac{2\pi}{|\Delta k_2 - G_{p,q}|} = 363\mu\text{m}$ , 半周期为

$$181.5\mu\text{m}$$

在实际操作中, 我们仍然采取四舍五入的方法, 由于基本单元是准周期排列的, 在局部区域, 半周期对应的基本单元数目是不同的, 可能出现的半周期基本单元数目主要为 10, 11, 偶尔也出现 9 和 12, 平均半周期的基本单元数目为 10.4, 由此所产生的误差的平均值也接近于零。周期-准周期混合结构的倒格矢应该等于周期结构的倒格矢和准周期结构的倒格矢之和, 即  $\Omega = G_p' + G_{m,n}$ ,  $\Omega$  代表周期-准周期混合结构的倒格矢,  $G_p'$  为调制周期的倒格矢,  $G_{m,n}$  为准周期结构的倒格矢, 在我们的设计中,

$\Omega_{1,1,1} = G_{1,1} - G_1' = \Delta k_1$  用于倍频过程的准位相匹配,  
 $\Omega_{2,3,1} = G_{2,3} + G_1' = \Delta k_2$  用于和频过程的准位相匹配, 即所谓 1,1;-1 耦合和 2,3;1 耦合。它们所对应的有效非线性系数分别为  $\Psi_{1,1,1}$  和  $\Psi_{2,3,1}$ 。

图 6-12 是周期--准周期混合结构的 Fourier 变换谱曲线。可以看出,  $\Psi_{1,1,1}$  与  $\Psi_{1,1,-1}$  以及  $\Psi_{2,3,1}$  与  $\Psi_{2,3,-1}$  是不相等的。造成  $\Psi_{1,1,1} \neq d_{1,1}d_1, \Psi_{1,1,-1} \neq d_{1,1}d_{-1}, \Psi_{2,3,1} \neq d_{2,3}d_1, \Psi_{2,3,-1} \neq d_{2,3}d_{-1}$  的原因也将是下一节要讨论的主要内容。图 6-13 是加入新的周期调制后准周期光学超晶格的二次谐波、三次谐波增长曲线。图 6-14 是原准周期结构(a)和调制后的周期-准周期结构(b)的二次谐波谱, 经过周期调制后的准周期结构在基波波长等于  $1.4580\mu\text{m}$  处获得到高效的二次谐波峰。可以看出, 原准周期结构经过周期调制后二次谐波峰出现了分裂。图 6-15 是我们设计的周期-准周期光学超晶格腐蚀后的光学显微照片。这种新的

周期--准周期结构大大拓宽了准周期光学超晶格在激光变频领域的应用范围。

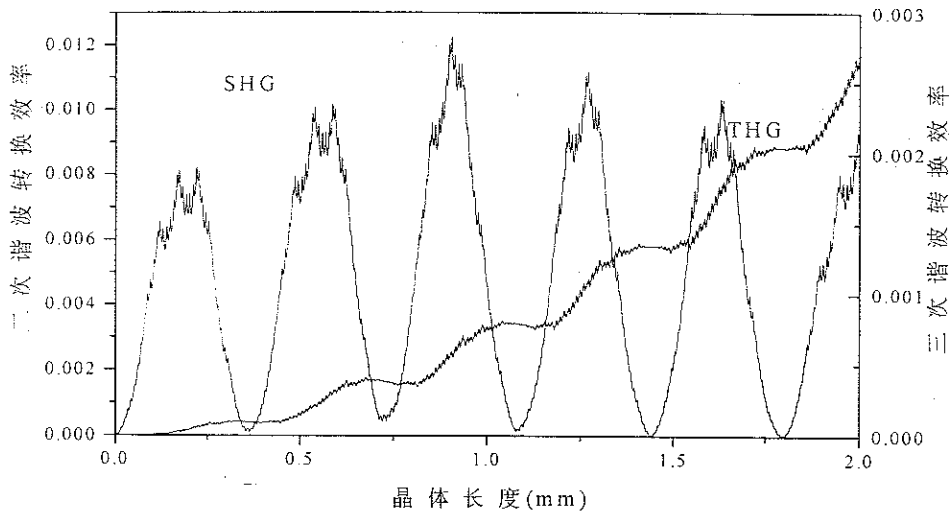


图6-11 以  $2l$  为平均周期的 Fibonacci 准周期结构中的谐波转换效率

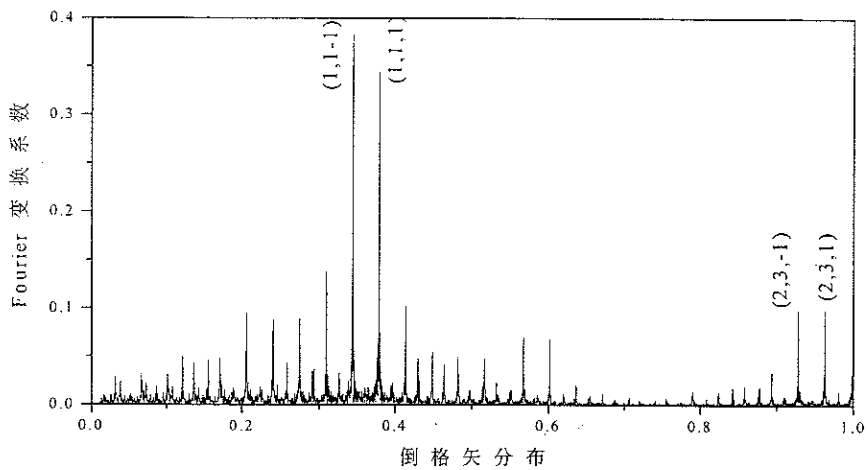


图6-12 周期--准周期混合结构的 Fourier 变换曲线

### 6-5 复合准位相匹配理论的进一步讨论

复合准位相匹配理论对于激光变频效应的研究是十分重要的，迭加新的周期结构以后，原周期或准周期结构与新结构相比，其结构性质有了明显的变化，这些结构性质的变化对于我们的研究也是至关重要的。必

须对新结构的倒格矢分布和有效非线性系数(Fourier 变换系数)的大小作系统的讨论。

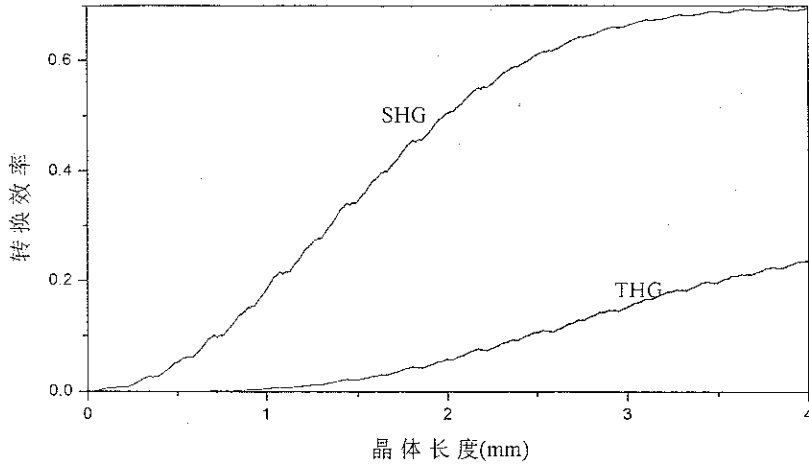


图6-13 周期--准周期混合结构中的二次谐波、三次谐波转换效率

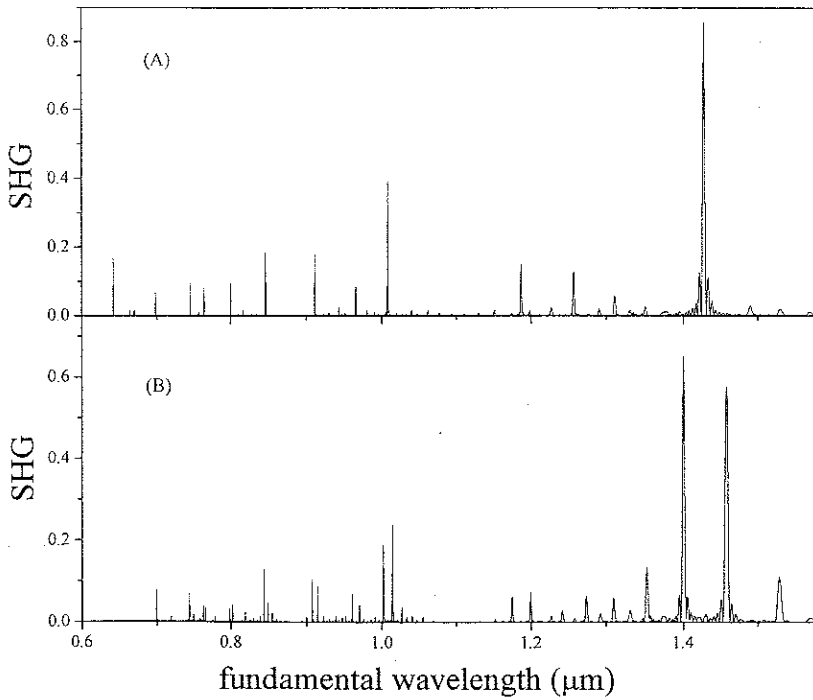


图6-14 二次谐波与基波波长的关系曲线

(a)对应于原准周期结构(b)对应于调制后的周期--准周期结构

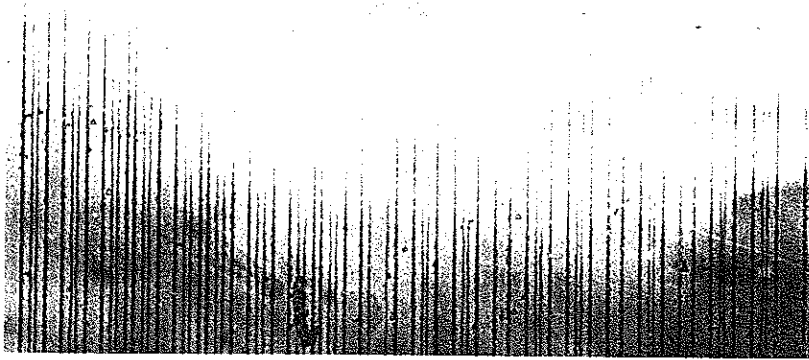


图 6-15 周期-准周期光学超晶格腐蚀后的光学显微照片

本章第三部分对应的情况是周期-周期结构的调制周期和原周期之间不是严格的倍数关系，如果调制周期和原结构周期之间有严格的倍数关系，我们可以得到倒格矢分布和有效非线性系数的解析表达式。

设  $L'$  为调制周期结构(大周期)的周期值， $\Lambda$  为原周期结构(小周期)的周期值， $L'=2k\Lambda$ ，则有效非线性系数即 Fourier 变换系数：

$$\begin{aligned}
 C_n &= \frac{1}{L'} \int_0^{L'} f(x) \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx \quad f(x) = \pm 1 \\
 &= \frac{1}{L'} \left[ \int_0^{\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx + \int_{\Lambda}^{2\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx + \dots + \int_{(k-1)\Lambda}^{k\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx \right] \\
 &= \frac{1}{L'} \left[ \int_{k\Lambda}^{(k+1)\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx + \int_{(k+1)\Lambda}^{(k+2)\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx + \dots + \int_{(2k-1)\Lambda}^{2k\Lambda} \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} x) dx \right] \\
 &= i \frac{1}{n\pi} \left\{ \left[ (1 + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} \Lambda) + \dots + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} (k-1)\Lambda)) \right] \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} l) \right. \\
 &\quad \left. - \left[ \frac{1 + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} k\Lambda)}{2} + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} \Lambda) + \dots + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} (k-1)\Lambda) \right] \right\} \\
 &= -i \frac{1}{n\pi} \left\{ \left[ (1 + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} \Lambda) + \dots + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} (k-1)\Lambda)) \right] \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} l) \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} k\Lambda) \right. \\
 &\quad \left. - \left[ \frac{1 + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} k\Lambda)}{2} + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} \Lambda) + \dots + \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} (k-1)\Lambda) \right] \exp(-i \frac{2n\pi}{L'} k\Lambda) \right\}
 \end{aligned}$$

当  $n$  为偶数时， $\exp(-i \frac{2n\pi}{L'} k\Lambda) = C_n = 0$

当  $n$  为奇数时,  $\exp(-i\frac{2n\pi}{L'}k\Lambda) = -1$

$$\begin{aligned}
 C_n &= -i\frac{2}{n\pi} \left[ (1 + \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}\Lambda) + \dots + \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}(k-1)\Lambda)(\exp(-i\frac{2n\pi}{L'}l) - 1) + 1 \right] \\
 &= -i\frac{2}{n\pi} \left[ 1 + (\exp(-i\frac{2n\pi}{L'}l) - 1) \frac{1 + \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}k\Lambda)}{1 - \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}\Lambda)} \right] \\
 &= -i\frac{2}{n\pi} \left[ 1 - 2 \frac{1 - \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}l)}{1 - \exp(-i\frac{2n\pi}{L'}\Lambda)} \right] \tag{6-17}
 \end{aligned}$$

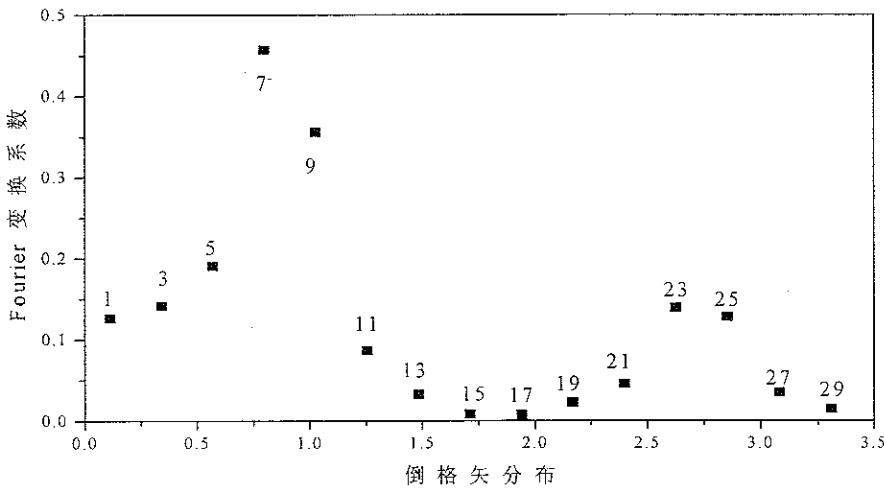


图 6-16 周期--周期混合结构的 Fourier 变换曲线(利用解析表达式)  
(调制周期与原周期之比为整数,  $2k=8$ )

$l$  为基本单元中正畴的宽度。

这种情况下, 周期--周期结构的倒格矢可以用一个整数  $N$  来标定:

$$\Omega_{m,n} = \frac{2\pi}{\Lambda}m + \frac{2\pi}{L'}n = \frac{2\pi}{L'}(2km + n) = \frac{2\pi}{L'}N \tag{6-18}$$

其相应的 Fourier 变换系数可表示为

$$d_m d_n = (2/m\pi)(2/n\pi)\sin(m\delta\pi)\sin(n\delta'\pi) \tag{6-19}$$

从图 6-16 可以看出, 当  $N$  为偶数时, 有效非线性系数等于零, 这是因为调制周期的“正畴”、“负畴”宽度相等, 均为  $L'/2$ , 如果其“正畴”、“负畴”的宽度

不等, 偶数的有效非线性系数也不等于零。当  $n=0$ , 即调制周期的倒格矢或 Fourier 系数取整数为零的分量,  $\Omega_{m,n}=2\pi(2km)/L'=2\pi m/\Lambda$ , 不论  $m$  取任何整数,  $N$  均为偶数, 有效非线性系数恒为零。而对于未经调制的原周期结构来说,  $m$  为奇数时有效非线性系数不等于零, 这是一种由于调制周期的引入而产生的新的消光现象。另外, 整数  $N=2km+n$  有多种组合方式, 它们都会对  $\Omega_N$  处的有效非线性系数产生贡献, 这种贡献必须考虑到 Fourier 变换系数的正负号, 当  $2k$  等于 8 时, 对于  $N=7$  和  $N=9$ , 它们的主要贡献来源于  $8-1$  和  $8+1$ , 即  $G_1-G_1'$ 、 $G_1+G_1'$  过程, 很显然,  $\Omega_7$  还包括下列过程:

$G_0+G_7'$ 、 $G_{-1}+G_{15}'$ 、 $G_2-G_9'$ 、 $G_{-2}+G_{23}'$ 、 $G_3-G_{17}'$ 、 $G_{-3}+G_{31}'$  等, 其中由于原周期结构的正负畴宽度相等,  $d_2$ 、 $d_0$ 、 $d_2$  均等于零, 因此,  $G_0+G_7'$ 、 $G_2-G_9'$ 、 $G_{-2}+G_{23}'$  的 Fourier 变换系数的贡献为零, 所以

$$\Psi_7 = d_1 d_{1'} + d_{-1} d_{15'} + d_3 d_{17'} + d_{-3} d_{31'} + \dots = (2/\pi)^2 (1 + (1/15) + (1/3)(1/17) + (1/3)(1/31) + \dots)$$

这就是  $\Omega_7$  的有效非线性系数大于  $(2/\pi)^2$  的原因。我们把这种混合周期倒格矢的多种组合方式, 称之为倒格矢耦合过程中的简并现象。正是这种倒格矢耦合的简并现象导致了有效非线性系数的涨落变化。同样,  $\Omega_9$  除了  $G_1+G_1'$  过程以外, 还包括了其他许多过程, 而这些过程的 Fourier 变换系数与  $G_1+G_1'$  过程的 Fourier 变换系数是反号的, 导致了  $\Omega_9$  的有效非线性系数小于  $(2/\pi)^2$ ,  $\Omega_7$  和  $\Omega_9$  考虑多过程的计算结果与图 6-16 利用解析表达式的结果是完全一致的, 这与我们用数值 Fourier 变换系数的计算结果也是非常接近的 (图 6-7), 说明我们在大周期与小周期之间不是严格的倍数关系时, 所采用的四舍五入反畴方法是十分有效的。由此看来, 周期---周期结构采用两个整数的标定方法是不够准确的,  $\Omega_{1,1}(G_1-G_1')$  及  $\Omega_{1,1}(G_1+G_1')$  分别只代表了  $\Omega_7$  和  $\Omega_9$  的主要过程, 这样的倒格矢表述及其有效非线性系数的计算势必带来较大的误差。因此, 用  $\Omega_N$  来表述既简便又准确, 且有效非线性系数的级数表达式是收敛的。

对于周期--准周期结构的耦合倒格矢分布及混合结构的 Fourier 变换系数 (有效非线性系数) 也可作相似的讨论, 该结构的倒格矢由准周期结构的倒格矢与周期结构的倒格矢组合而成, 即

$$\Omega_{m,n,p} = \frac{2\pi(m+n\tau)}{D} + \frac{2\pi p}{L} \quad (6-20)$$

其相应的 Fourier 变换系数为

$$d_{m,n}d_p = 2 \frac{(1+\tau)l}{D} \frac{\sin\left(\frac{G_{m,n}l}{2}\right)}{\left[\frac{G_{m,n}l}{2}\right]} \frac{\sin(X_{m,n})}{(X_{m,n})} \frac{2}{p\pi} \sin(p\pi\delta) \quad (6-21)$$

$D=\tau l_A+l_B$  为准周期结构的结构参数,  $l$  为 A、B 基元的正畴宽度,  $X_{m,n}=\pi(mL_A-nL_B)(1+\tau)/D$ ,  $L$  为调制结构的周期,  $\delta$  为该结构的占空比, 由于  $\delta=0.5$ ,

$$d_{m,n}d_p = 2 \frac{(1+\tau)l}{D} \frac{\sin\left(\frac{G_{m,n}l}{2}\right)}{\left[\frac{G_{m,n}l}{2}\right]} \frac{\sin(X_{m,n})}{(X_{m,n})} \frac{2}{p\pi} \quad (6-22)$$

$p$  为奇数

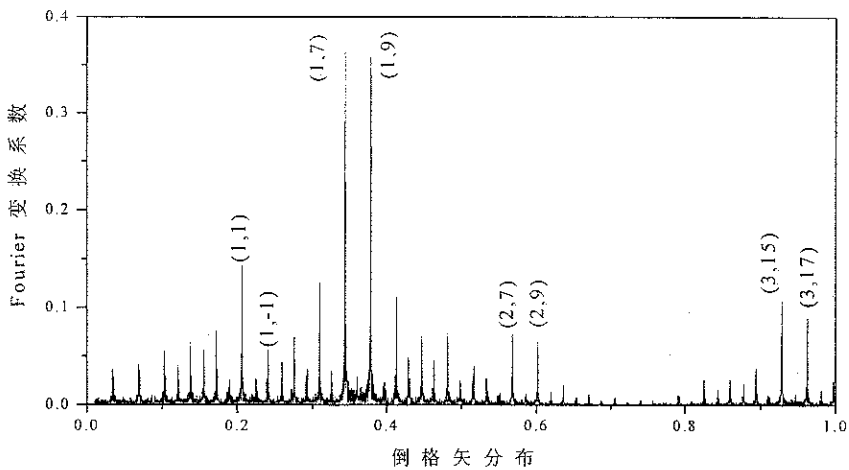


图 6-17 周期-准周期混合结构的 Fourier 变换曲线  
(调制周期与准周期的结构参数之比为整数,  $k=8$ )

从图6-12和图6-17都可以看出,  $\Omega_{m,n,p}$  和  $\Omega_{m,n,p}$  对应的 Fourier 变换系数有明显的差异, 其原因在于: 对于某一具体的倒格矢位置  $\Omega_{m,n,p}$ ,  $m,n,p$  有多种组合可能使得组合成的倒格矢有相同的值, 即满足表达式  $\Omega_{m,n,p}$  的  $n,m,p$  有多种取值可能, 而各种取值可能所对应的 Fourier 变换系数对总的有效非线性系数均有贡献。为了讨论方便, 假定调制结构的周期是准周期结构结构参数的整数倍, 图6-17就是这种情况下的 Fourier 系数的变换谱,  $L=8D$ ,

$L=364.34\mu\text{m}$ , 与我们实验中设计的调制周期  $363\mu\text{m}$  是相当接近的。根据公式:

$$\Omega_{m,n,p} = \frac{2\pi(m+n\tau)}{D} + \frac{2p\pi}{L} = 2\pi \frac{n\tau}{D} + 2\pi \left( \frac{m}{D} + \frac{p}{L} \right) = \frac{2\pi n\tau}{D} + \frac{2\pi(km+p)}{L} \quad (6-23)$$

因为我们用  $G_{1,1}-G_1$  来实现倍频过程的准位相匹配, 用  $G_{2,3}+G_1$  来实现和频过程的准位相匹配, 所以重点分析  $G_{1,1}-G_1$  及  $G_{1,1}+G_1$ ,  $G_{2,3}-G_1$  及  $G_{2,3}+G_1$  对应的复合倒格矢, 由于其多重取值引起的有效非线性系数的差异。

对于倒格矢等于  $G_{1,1}-G_1$  的情况,  $km+p=7$ , 除了有效非线性系数  $d_{11}d_1$  的贡献外, 还有其他倒格矢合成过程产生的 Fourier 变换系数的贡献:

$G_{0,1}+G_7$ 、 $G_{2,1}-G_9$ 、 $G_{3,1}-G_{17}$  均对应于  $km+p=7$ 。这些倒格矢耦合过程对应的有效非线性系数使得  $G_{1,1}-G_1$  耦合过程的有效非线性系数  $d_{11}d_1$  的绝对值增大,

同样, 对应于倒格矢等于  $G_{1,1}+G_1$  的情况,  $km+p=9$ , 除了有效非线性系数  $d_{11}d_1$  的贡献外, 还有其他倒格矢合成过程产生的 Fourier 变换系数的贡献:

$G_{0,1}+G_9$ 、 $G_{2,1}-G_7$ 、 $G_{3,1}-G_{15}$  均对应于  $km+p=9$ 。

这些倒格矢耦合过程对应的有效非线性系数使得  $G_{1,1}+G_1$  耦合过程的有效非线性系数  $d_{11}d_1$  的绝对值减小。这一变化规律表现在图6-12和图6-17的 Fourier 变换曲线上。

对于另外两个倒格矢过程  $G_{2,3}-G_1$  和  $G_{2,3}+G_1$ , 分别有:

$km+p=15$ ,  $km+p=17$ 。

对应于  $km+p=15$  的情况, 参与贡献的合成过程还包括:

$G_{0,3}+G_{15}$ 、 $G_{1,3}+G_7$ 、 $G_{3,3}-G_9$  等

对应于  $km+p=17$  的情况, 参与贡献的合成过程还包括:

$G_{0,3}+G_{17}$ 、 $G_{1,3}+G_9$ 、 $G_{3,3}-G_7$  等

这些过程对应的 Fourier 变换系数分别对  $G_{2,3}-G_1$  和  $G_{2,3}+G_1$  过程的有效非线性系数产生了贡献。以上的分析是在调制周期与准周期结构参数成严格的倍数关系时得到的, 因此整数  $n$  是不能改变的, 如果调制周期与准周期结构参数不是成严格的倍数关系, 也可能通过改变  $n$  的值来满足同样的倒格矢合成过程, 参与合成的倒格矢数目会更多, 由此也将导致 Fourier 变换系数的进一步差异(图6-12)。

这种情况下, 我们可以定义平均有效非线性系数:

$$\overline{\Omega_{m,n}} = (\Omega_{m,n} + \Omega_{m,-n}) / 2$$

$$\overline{\Omega_{m,n,p}} = (\Omega_{m,n,p} + \Omega_{m,n,-p}) / 2$$

尽管  $\Omega_{m,n}$  和  $\Omega_{m,-n}$  均不等于  $d_m$  和  $d_n$  ( $d_{-n}$ ) 的乘积,  $\Omega_{m,n,p}$  和  $\Omega_{m,n,-p}$  也不等于  $d_{m,n}$  和  $d_p$  ( $d_{-p}$ ) 的乘积, 然而他们的平均值是满足这一等式的。即

$$(\Omega_{1,1} + \Omega_{1,-1}) / 2 = (2 / \pi)^2$$

$$(\Omega_{3,1} + \Omega_{3,-1}) / 2 = (2 / \pi)^2 / 3$$

$$(\Omega_{1,1,1} + \Omega_{1,1,-1}) / 2 = d_{1,1} d_1$$

$$(\Omega_{2,3,1} + \Omega_{2,3,-1}) / 2 = d_{2,3} d_1$$

由此看来, 用三个整数来描述倒格矢位置也是不合适的, 它只能代表一个主要的倒格矢过程, 用两个整数来描述倒格矢位置就基本上包含了所有参与耦合的倒格矢过程。如  $\Omega_{1,7}$  可以代表  $G_{1,1} - G_1$ 、 $G_{0,1} + G_7$ 、 $G_{2,1} - G_9$ 、 $G_{3,1} - G_{17}$ ..... 等许多过程。如图 6-17 所示。

通过前面部分的分析还可以发现, 对于不同的基波波长, 在原周期或准周期上所调制的周期结构是不一样的, 这样的周期调节主要取决于现基波波长与在选取一定的倒格矢条件下满足准位相匹配的基波波长的偏离程度, 对于周期结构, 满足  $G_1$ 、 $G_3'$  分别匹配倍频与和频过程的基波波长为 1337.0 nm, 新的基波波长为 1064.0nm, 调制周期的周期为 56.8 $\mu$ m, 对于准周期结构, 满足  $G_{1,1}$ 、 $G_{2,3}'$  分别匹配倍频与和频过程的基波波长为 1569.0 nm, 新的基波波长为 1458.0 nm, 调制周期为 363 $\mu$ m, 可以看出: 新的调制周期的周期与基波波长的偏离程度成反比, 偏离越小, 调制周期越大, 当偏离为零时, 调制周期为无穷大, 即无须对原周期或准周期结构进行调制。另外, 调制周期的值必须大于原周期结构的周期或原准周期结构的基本单元的宽度, 这就限制了基波波长的偏离量, 因此, 不论从哪个角度来说, 我们都应该使偏离量尽可能的小, 也就是说, 当需要的基波波长确定以后, 微结构设计的第一步是在该基波波长附近选择满足倍频、和频准位相匹配的一组倒格矢, 当然, 这组倒格矢所对应的有效非线性系数应该尽可能大, 在此基础上开始新结构的设计, 大的调制周期对于我们实验中的制版、光刻、外电场脉冲极化都是较为有利的。

## 参考文献:

- [1] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, Y.Q.Qin and N.B.Ming, Phys. Rev. Lett. 78. 2752(1997)

- [2] S.N.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming, *Science* 278, 843(1997)
- [3] W.J.Kozlovsky et al., *Appl. Phys. Lett.* 56, 2291(1990)
- [4] Y.Tanabe, *Nippon Kagaku Kaishi* 10, 1029 (1992)
- [5] T.Y.Fan, et al. *J. Opt. Soc. Am B*, 3, 140(1986)

## 第七章 LiNbO<sub>3</sub> 光学超晶格中的 Cascade 二级非线性系数及其非线性光学效应

我们研究了光学超晶格中的激光变频效应, 激光变频效应是基于准位相匹配理论的原理, 对单畴的铁电晶体进行周期或准周期的结构调制, 形成周期超晶格和准周期超晶格, 其目的在于利用周期或准周期结构提供的倒格矢匹配倍频、和频及差频过程中的位相失配, 使得产生的谐波在传播过程中具有相同的位相, 从而获得高效的谐波产生和参量输出。另一方面, 如果位相匹配或准位相匹配条件得不到满足, 谐波的产生是振荡的, 其转换效率也是很低的, 这一现象已经在前面几章的分析中作了仔细研究。显然, 这种位相失配或准位相失配的情况对激光变频是十分不利的, 然而, 在这种情况下, 能够产生一种新的非线性现象--- Cascade 二级非线性现象以及相关的非线性光学效应<sup>[1]-[6]</sup>, 这些非线性光学效应在体块晶体材料和超晶格材料中都能够出现, 在全光开关<sup>[7]-[8]</sup>、光学双稳、光信号压缩器件<sup>[9]-[10]</sup>的研究领域具有广泛的应用前景。本章介绍了 Cascade 二级非线性现象的基本物理过程, 研究了体块晶体材料及超晶格材料中的非线性相移和超晶格材料中的光学双稳效应。

### 7-1 Cascade 二级非线性光学现象

对于简单的二次谐波产生过程, 根据 Maxwell 方程组, 能够推导出简单的振幅耦合方程:

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dx} = -i \frac{\omega_1 d_1}{n_1 c} E_2 E_1^* e^{-i\Delta k x} \\ \frac{dE_2}{dx} = -i \frac{\omega_2 d_2}{2n_2 c} E_1^2 e^{i\Delta k x} \end{cases} \quad (7-1)$$

其中  $\Delta k = k_2 - 2k_1$

假设 SHG 过程是位相失配即位相失配因子  $\Delta k \neq 0$  条件下发生的, 前面的讨论告诉我们, 在这种情况下, 基波与二次谐波之间的转换效率通常是很低的, 该条件下的频率转换过程仅仅影响基波的位相。直接对第二个方程积分, 考虑到  $E_1$  变化很小, 在积分中被认为是常量, 应用初始条件  $E_2(0)=0$ , 得到:

$$E_2(x) = -i \frac{\omega_2 d_2}{2n_2 c} E_1^2 (e^{i\Delta k x} - 1) / i\Delta k$$

由此可以得到:

$$\frac{dE_1}{dx} = -i \frac{1}{2} \frac{(\omega_2 / c)(\omega_1 / c)}{n_1 n_2} |E_1|^2 E_1 \frac{d_1 d_2}{\Delta k} (e^{i\Delta k x} - 1) \quad (7-2)$$

$$d_1 = \chi^{(2)}(\omega_1; \omega_2, -\omega_1) / 2, \quad d_2 = \chi^{(2)}(\omega_2; \omega_1, \omega_1) / 2$$

由直接的三级非线性极化率(四阶张量)导致的基波变化可写成下列标准形式:

$$\frac{dE_1}{dx} = -i \frac{\omega_1 d_3}{n_1 c} |E_1|^2 E_1 \quad (7-3)$$

$d_3 = 3\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, \omega_1, \omega_1) / 4$ ,  $3\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, \omega_1, \omega_1) / 4$  是四波混频过程中产生基波分量的三阶非线性电极化率, 比较以上两式, 可以定义有效的 Cascade 三级有效非线性电极化率为:

$$d_3^{\text{casc}} = -\frac{1}{2} \frac{\omega_2}{n_2 c} \frac{d_1 d_2}{\Delta k} (1 - e^{i\Delta k x}) \quad (7-4)$$

对于非零的位相失配, 括号里的第二项是振荡的, 其作用相比于第一项可以忽略, 上式可以近似为:

$$d_3^{\text{casc}} = -\frac{1}{2} \frac{\omega_2}{n_2 c} \frac{d_1 d_2}{\Delta k} \quad (7-5)$$

一般认为,  $d_1 = d_2 = \chi^{(2)} / 2$ , 可以得到类 Kerr 效应引起的折射率变化:

$$n = n_1 + n_2^{\text{kerr}} |E|^2, \quad n_2^{\text{kerr}} = (d_3^{\text{dir}} + d_3^{\text{casc}}) / n_1$$

$n_1$  为基波对应的折射率。三级有效非线性电极化率包括两部分,  $d_3^{\text{dir}}$  是直接由  $3\chi^{(3)}(\omega_1; \omega_1, \omega_1, \omega_1) / 4$  产生的基波分量, 而  $d_3^{\text{casc}}$  则是由 Cascade 非线性过程引起的等效三级非线性极化率, Cascade 非线性过程包括两个二级非线性过程, 即基波向倍频的转换过程和倍频回到基波的差频过程, 在这个过程中, 倍频的转换效率是很低的, 但在倍频回到基波的差频过程中, 能够产生等效的三级非线性极化率, 这是一种新的非线性物理现象, 是非线性光学的又一研究热点。比较  $d_3^{\text{dir}}$  和  $d_3^{\text{casc}}$  大小, 在 LN 晶体中, 当  $d_{33} = 36\text{pm/V}$  时,  $d_3^{\text{casc}}$  比  $d_3^{\text{dir}}$  高一个数量级。这对于我们研究基于类 Kerr 效应的各种非线性现象是十分有利的。

## 7-2 基于二级 Cascade 非线性现象的基波非线性相移

对于准位相匹配的激光变频过程, 可以获得高效的二次谐波及高次谐波输出, 在二次谐波和高次谐波的产生过程中, 其基波的位相保持不变。当位相匹配或准位相匹配条件不能满足时, 产生二级 Cascade 非线性效应, 二级 Cascade 非线性系数的一个重要物理现象就是基波的相移。二次谐波的振幅耦合方程可以表示为:

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dx} = -i \frac{\omega_1 d_1}{n_1 c} E_2 E_1^* e^{-i\Delta k x} \\ \frac{dE_2}{dx} = -i \frac{\omega_2 d_2}{2n_2 c} E_1^2 e^{i\Delta k x} \end{cases} \quad (7-6)$$

其中,  $d_{\text{eff}} = d_1 = \chi^{(2)}(\omega; 2\omega, -\omega)/2 = d_2 = \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)/2$ , 为了简化方程, 定义参数:

$$\Gamma = \frac{\omega d_{\text{eff}} |E_0|}{c \sqrt{n_2 n_1}} E_0 \text{ 是基波的人射场强, 从以上方程组消去倍频场强 } E_2, \text{ 得到有}$$

关基波场强  $E_1$  的二阶微分方程:

$$\frac{d^2 E_1}{dz'^2} + i\Delta k \frac{dE_1}{dz'} - \Gamma^2 (1 - 2|E_1 / E_0|^2) E_1 = 0 \quad (7-7)$$

对于完全的位相匹配  $\Delta k=0$ , 方程的解为

$$E_1 = E_0 \text{sech}(\Gamma L) = 2 / (\exp(\Gamma L) + \exp(-\Gamma L)) \quad (7-8)$$

此时, 基波场强保持位相不变。

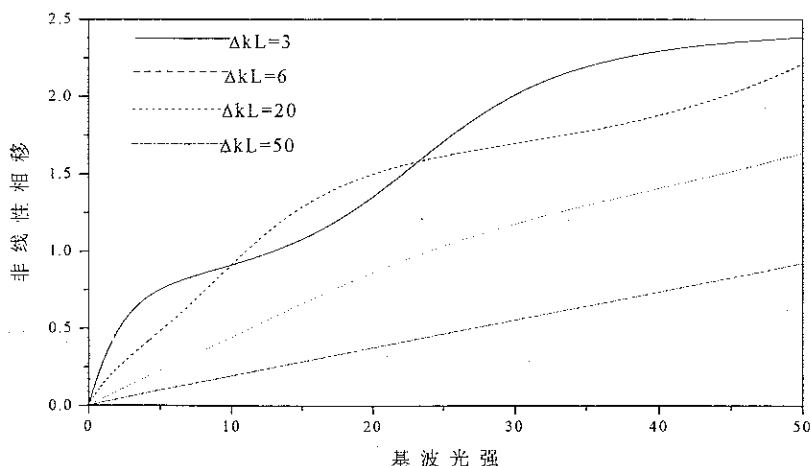


图7-1 非线性相移随基波光强的变化曲线

图7-1 是对于各种不同的位相失配条件下，位相偏移与基波光强的变化关系，可以看出，位相失配对相移有重要的影响。在小转换效率的近似下，基波的振幅近似保持不变，即  $|E_1| \cong |E_0|$ ， $E_1(z) = |E_0| \times \exp(-i\Delta\Phi^{NL}(z))$ 。代入方程，可以得到  $z=L$  处的相移

$$\Delta\Phi^{NL} \cong (\Delta k L / 2) \{1 - 1/[1 + (2\Gamma/\Delta k)^2]^{1/2}\} \quad (7-9)$$

很明显，相移  $\Delta\Phi^{NL}$  是非线性的，对于较大的位相失配或者较低的入射光强， $|\Delta k| \gg |\Gamma|$ ，非线性相移变成相移与入射光强的线性依赖关系：

$$\Delta\Phi^{NL} \cong -(\Gamma L)^2 / (\Delta k L) \quad (7-10)$$

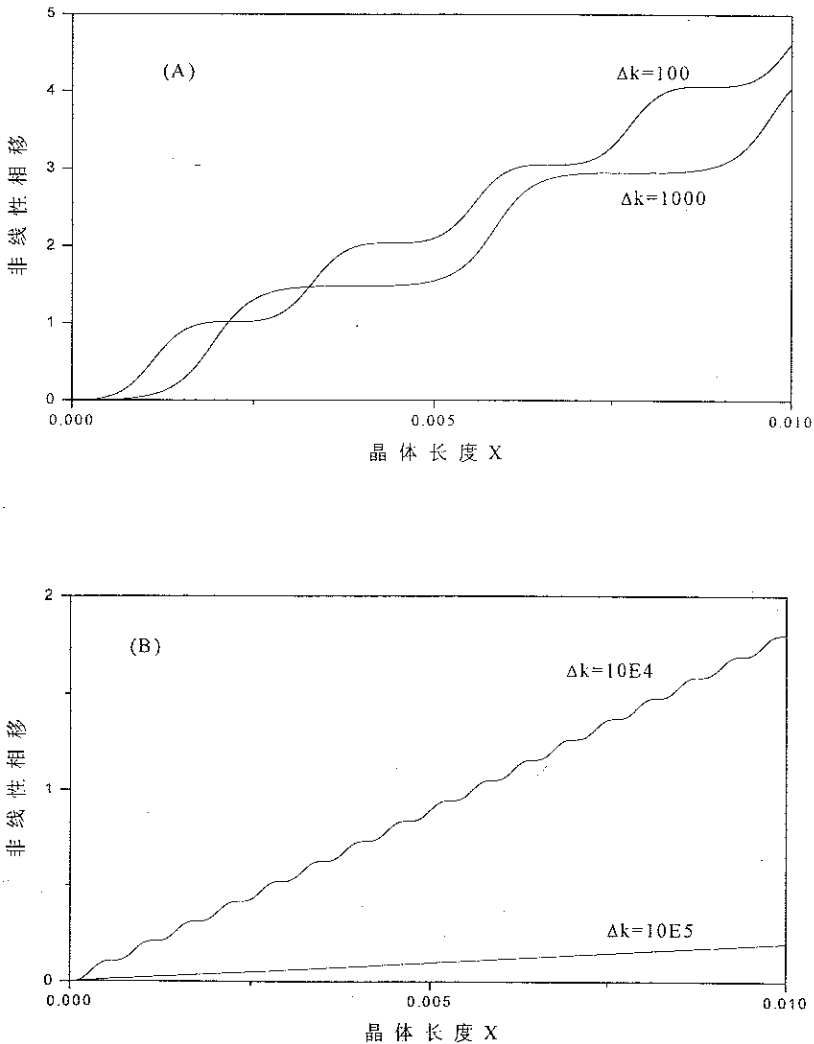


图7-2 非线性相移在晶体内部的分布曲线(a)  $\Delta k = 100$ ,  $\Delta k = 1000$  (b)  $\Delta k = 10^4$ ,  $\Delta k = 10^5$

这一点从图7-1中也能够看出来, 当 $\Delta kL$ 较小时, 线性关系只在 $(TL)^2$ 较低时成立, 对应于较低的入射光强。当 $\Delta kL=50$ 时, 其变化曲线在整个区域基本上都是线性的, 这一结果类似于光学中多年Kerr效应, 这种Cascade现象引起的类Kerr效应也可以表示为 $n = n_1 + \Delta n = n_1 + n_2^{\text{eff}} I$ , 类比于光学Kerr效应, 非线性相移可写成:

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} = (2\pi L/\lambda) n_2^{\text{eff}} I \tag{7-11}$$

其中 $I = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |E_1|^2$  则:

$$n_2^{\text{eff}} = -\frac{4\pi L d_{\text{eff}}^2}{c\epsilon_0 \lambda n_2 n_1 \Delta k L} \tag{7-12}$$

写成场强的形式:

$$n = n_1 + n_2^{\text{eff}} \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |E_1|^2 = n_1 - \frac{\omega d_{\text{eff}}^2}{c n_2 n_1 \Delta k} |E_1|^2 = n_1 + \frac{d_{3\text{eff}}}{n_1} |E_1|^2 \tag{7-13}$$

$d_{3\text{eff}}$  的解析表达式与我们上面的 $d_3^{\text{casc}}$  结果是完全一致的。从一个方面也说明Cascade非线性现象有着与直接的三级非线性极化率相似的特性。

图7-2显示了位相转移在晶体内部的分布关系曲线, 可以看出, 对于相同的晶体长度, Cascade引起的非线性相移, 强烈地依赖于倍频过程中的波矢失配 $\Delta k$ , 图7-2(a)的曲线分别对应于 $\Delta k=100$ 及 $\Delta k=1000$ , 图7-2(b)的曲线分别对应于 $\Delta k=10^4$ 及 $\Delta k=10^5$ , 图7-2(a)中的非线性相移量明显大于图7-2(b)中的非线性相移量。因此, 若想获得较大的非线性位相偏移, 必须有较小的波矢失配, 通常采用角度或温度调节的双折射匹配技术来达到较小的波矢失配, 众所周知, 对于优秀的非线性光学晶体LN、LT(LN,  $\lambda < 1$ 微米时), 由于晶体的双折射很小, 难以获得较小的波矢失配, 因此也就不可能在这类体块晶体材料中获得有效的位相转移。对应于LT基波波长为 $1.3340\mu\text{m}$ 的位相偏移量在体块材料中的变化曲线如图7-2(b)所示, 波矢失配大约为 $10^5$ , 因为其波矢失配相当大, 位相偏移量是非常小的, 根本不能获得有实用价值的效果。解决这一困难的唯一方法是采用人工调节的超晶格材料。在人工调节的超晶格材料中, 可以很方便地获得接近于准位相匹配时的较小的波矢失配, 当周期超晶格的周期为 $14.8\mu\text{m}$ 时, 对应于基波波长为 $1.3340\mu\text{m}$ 的波矢失配大约为100, 图7-2(a)是该过程中非线性相移的变化曲线, 很显然, 经过同样的晶体长度, 位相偏移量远远大于体块材料的量值, 已经完全达到有实用价值的程度。图7-3是非线性位相偏移与波矢失

配的关系曲线，可以发现非线性相移对波矢失配是相当敏感的，与传统采用温度调节和角度调节的方法相比，在超晶格材料中可以通过调节波长的方法来调节波矢失配量，获得较大的非线性相移。这一思路采用OPO、OPA作为光源是能够实现的。这些结论对设计相位偏移器件具有指导意义。

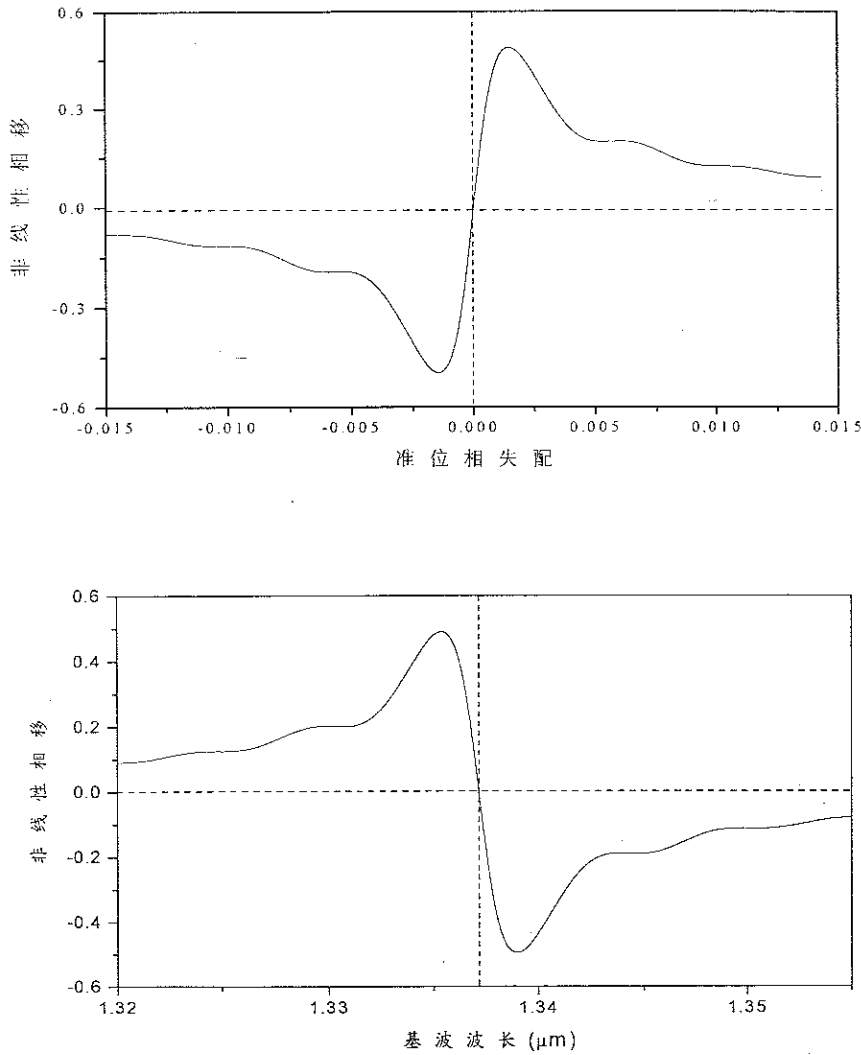


图7-3 周期超晶格材料中，非线性相移随(a)波矢失配(b)基波波长的变化曲线

### 7-3 LiNbO<sub>3</sub> 周期光学超晶格中的光学双稳效应