

南京大学

硕士学位论文

光学超晶格的微结构设计及非线性效应的研究

姓名：魏洪

申请学位级别：硕士

专业：材料物理化学

指导教师：朱永元

2001. 6. 1

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。其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。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材料结构设计，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研究了在任意波长实现激光三倍频的可能性，完成了从研究现有结构到设计新结构以满足所需的飞跃。作为二组元准周期结构的延伸，本文详细研究了三组元准周期结构的傅里叶谱、迭代公式以及它与二组元、周期结构的关系。主要涉及如下几方面的内容：

- 1、利用投影理论的方法，系统研究了变角度的二组元准周期结构。提出了一套结构设计的新思路，使得通过 QPM 实现任意波长的三次谐波输出成为可能。
- 2、根据这套理论，设计并制备出了能够产生 480nm 蓝光的 LT 准周期超晶格。用脉冲激光作为光源，获得了效率高达 27% 的蓝光三倍频。同时通过调谐基波波长获得了具有一定效率的倍频黄光、红光和红外光。其结果与理论值符合的很好。
- 3、理论上研究了三组元的准周期结构，分析了其傅里叶谱。通过投影的方法给出了其解析的表达式，明确了其傅里叶系数的大小和位置与结构参数之间的关系。通过与二组元准周期结构和周期结构的比较，给出了 K ($K \leq 3$) 组元的傅里叶谱的通项表达式。
- 4、在三组元准周期结构中实现了大于两个的光参量的耦合。理论上证实只要改变投影角的大小和具体的结构参数，可以实现任意波长的五倍频输出。设计出可以直接产生五倍频的三组元准周期结构，其效率理论上可以达到 50%。
- 5、研究了周期结构中的耦合光参量过程。以 1960nm 为基波，首次在实验中观测到了 SHG、THG、4thHG、5thHG 的同时输出。

Abstract

Recently, optical superlattice has been paid attention in condensed matter physics and materials science fields, which has particular photoelectric function. The research of nonlinear optical effect in optical superlattices is mainly involved in the quasi-phase-matched frequency conversion. In view of research modes, the research of nonlinear optical effect in optical superlattices consists of two stages: primary stage and advanced stage. The primary stage is to study the properties and the possible application of the existing materials and structures. In contrast to the primary stage, the advanced stage is to design and fabricate, according to certain needs of application, new structures and materials that do not exist in nature, which has widened the research scope. We theoretically and experimentally investigated possibility to realize the Third-Harmonic Generation (THG) in a general two-component Quasi-Periodic Optical Superlattice (QPOS) at any predetermined wavelength, which complete the leap from studying the existed materials to design new materials. At the mean time, the researches of the nonlinear optical effect in the quasi periodic superlattice also greatly accelerate the basic study of the quasi periodic structure. As a natural extension of the two-component quasi periodic structure, we intensively investigated the Fourier transformation of the three-component quasi periodic structure, and compared it with the two-component and periodic cases. The obtained results are described as follows:

1. Using the project method, we systemically studied the general-two-component quasi periodic structure and proposed a method for designing quasi periodic structure for efficient third-harmonic generation (THG) at any predetermined wavelength.
2. Based on this method, we prepared the LT quasi periodic superlattice that can generate blue laser beam at 480nm. The measured output efficiency is larger than 27% with a pulse laser source. Changing the input wavelength, we also got a series of high efficient SHG outputs at different wavelengths, which manifested the veracity of our method.
3. We Theoretically studied the three-component quasi-periodic superlattice (3CQS) and analyzed its Fourier spectrum. With the project method, an analytical expression was given, which clearly display the relation between the Fourier coefficient and the structure parameter. Through the comparison between 3CQS,

two-component quasi periodic superlattice (2CQS) and periodic structure, we also gave out an analytical expression of its Fourier spectrum which can be applied to K-component case with $K \leq 3$.

4. More than two optical parameter processes can be achieved in the three-component quasi periodic structure. The direct 5thHG at any predetermined wavelength can be achieved with a specific project angle and structure parameters. The theoretical conversion efficiency is $\sim 50\%$.
5. The coupled optical parameter generation in the periodic structure was studied. With the specific input wave at 1960nm, we firstly get SHG, THG, 4thHG and 5thHG output simultaneously.

第一章 前言

自从 1960 年世界上第一台激光器诞生之后，非线性光学这门学科获得了广泛的发展。1961 年，Franken 等人将红宝石激光束聚焦到石英晶体上，首次观察到了红宝石激光的二次谐波辐射。这个实验证实了极化强度 \vec{P} 与入射光场强 \vec{E} 的函数关系是非线性的，其中存在二次项。从此，人们进入了非线性光学这个全新的领域。然而，在该实验中由于基频与倍频光存在着位相失配，入射的基频(ω)光的能量只有极少部分转换为二倍频(2ω)光的能量，从而导致二次谐波的转换效率很低 $\sim 10^{-8}$ 。不久，Kleinman 等人提出双折射相位匹配理论(BPM)，指出利用晶体的双折射效应能在双折射晶体中达到相速度匹配，从而可以实现相位匹配的倍频。1962 年，Bloembergen 等提出准相位匹配理论(QPM)：通过晶体的非线性极化率的周期性调制可以弥补光参量过程中由于折射率色散造成的基波和谐波之间的位相匹配，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。

所谓介电体超晶格是指介电体为基质材料，其微结构的调制通常可通过铁电畴、铁弹畴的调制，组分或异质结构的调制，相结构或结晶学取向的调制等方式来实现。介电体超晶格的类型可以是一维的、也可以是二维、三维的，可以是周期的，也可以是准周期的或其他复杂结构。其特征长度一般是微米量级，所以也可称之为微米超晶格。介电材料中重要的物理过程是经典波（光波与声波）的激发和传播。由于介电体超晶格通过微结构的调制而实现材料物理性质的调制，并且调制的尺度与光波和超声波可比拟，这样介电体超晶格的倒格矢将参与光波、声波的激发与传播过程，产生新的光学与声学效应。这也是介电体超晶格之所以可以应用于激光频率转换的理论依据。

用微结构材料代替均匀材料，用 QPM 实现激光频率转换效应的增强，在技术上具有很大的吸引力。这是因为采用 BPM 受到材料本身的许多限制，如晶体需要沿特殊方向切割，或者需要特定的工作温度，而且对于每一具体的材料，双折射也只能在一定波段范围内起补偿作用。比如铌酸锂(LN)就不能用 BPM 实现兰光倍频，钽酸锂(LT)的双折射远小于自身的色散，根本就不能采用 BPM 完成有效的非线性光学过程。再者，BPM 需要参与相互作用的光波具有不同的偏振方向，这

样就只能利用晶体非线性系数中的较小的非对角元素，这影响了频率转换的效率。而 QPM 需要的调制周期可以人为的根据晶体折射率色散加以设计，所以它可以将匹配的范围覆盖材料整个透明波段而无特殊的角度、温度要求。光波的偏振方向可都沿着晶体的 z 轴，以利用非线性系数中较大的对角元素，并且没有产生离散的光孔效应，从而可获得较高的频率转换效率。对于 LN 晶体，采用 QPM 比采用

BPM 理论上其倍频效率要提高 $\left(\frac{2 \cdot d_{33}}{\pi \cdot d_{13}}\right)^2 \approx 20$ 倍。因此，QPM 在激光频率转换，

光参量振荡和光参量放大等方面是很具应用前景的。80 年代以来，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。

1980 年南京大学冯端、闵乃本领导的课题组通过在直拉法生长 LN 晶体过程中调制杂质钇的溶度，诱发出周期性电畴结构，用电畴的调制实现了二级非线性系数的调制，首次制成了聚片多畴 LN 单晶，并且观察到了 YAG 激光的倍频 QPM 增强效应，这可能是真正意义上的具有特定物理效应的第一种介电体超晶格材料^[5]。

介电体超晶格研究的快速发展出现在 80 年代后期。这时小型实用化的近红外半导体激光器的材料制备与器件技术已日臻成熟，但由于材料本身的局限，实用半导体激光器的输出波段主要在近红外区。而高技术的发展提出了对不同波段实用化激光器的需求，其中用于信息存储的兰光，用于水下通讯的绿光，用于光纤通讯的 $1.3 \sim 1.6 \mu\text{m}$ 的红外光，以及用于大气和环境监测的中远红外光，仅靠现有的激光器是不能覆盖的。利用非线性光学晶体的非线性效应展宽现有激光器所覆盖的频段，已成为物理界、光学界、材料界与技术界都非常关注的问题。由于 QPM 方法和微结构材料在这方面可能发挥的独特作用，人们加快了对具有调制结构的介电体晶格，特别是具有周期铁电畴结构的铁电晶体在激光频率转换方面的研究。在材料制备上，除了完善原有的 Czochralski 生长工艺外，又发展了激光基座法、电子束扫描、外电场诱导和杂质离子扩散等制备铁电微米超晶格的技术，先后在块状和波导 LN、LT 和 KTP 中实现了高效的 QPM 倍频、和频以及光参量振荡。利用微结构优化材料性能，获得均匀材料所不具备的新效应受到普遍关注。1993

年，Yamada 等人首次利用脉冲电场极化技术制备了厚 0.2mm 的周期铌酸锂超晶格材料。与别的极化方法相比，这种方法的极化图案是预先做在光刻版上的，图案的周期是能够预先精确控制的，最后能够在晶体中得到比较理想的畴结构。室温极化技术已成为超晶格制备方法中发展的最成熟、应用最广泛的技术。

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，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。同时，准周期超晶格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和金属超晶格相继制备成功。进入 90 年代，南京大学闵乃本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，并且利用室温极化技术成功地制备出具有 Fibonacci 序列的铌酸锂准周期超晶格，获得高效的三倍频绿光输出。由此，属于准周期范畴的多种结构被用于介电超晶格，并且得到了一系列丰富而有实用意义的结果。

本论文的工作主要集中在准周期结构及其非线性光学效应的研究。提出了一套能够实现任意波长倍频和三倍频输出的结构设计方案，并在实验上利用 LT 准周期超晶格加以证实。其中观测到了 480nm 的高效率的三倍频光。作为对二组元准周期结构的推广，我们研究了三组元的准周期结构，并提出了其 Fourier 变换的完整的数学表达式。与二组元结构相比，三组元结构能够提供更多的倒格矢，设计上可以更灵活。特别是可以同时提供三个以上的倒格矢参与光参量过程，从而实现五倍频的输出。作为一种特殊情况，我们还研究了在周期结构中的耦合光参量过程，首次获得了 SHG、THG、4thHG、5thHG 的同时输出。

【参考文献】

1. F.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing and P.S.Pershan, Phys.Rev,127,1918 (1962)
2. N.B.Ming, Progress in Nature Science 4,554 (1994)
3. D.Feng, N.B.Ming, J.F.Hong et al., Appl.Phys.Lett, 37, 607 (1980)
4. M.Yamada, N.Nada, M.Saitoh and K.Watanabe, Appl.Phys.Lett. 62, 435 (1993)
5. P.J.Steinhardt and Ostlund.S, The Physics of Quasicrystal, World Scientific, Singapore, (1987)
6. Y.Y.Zhu and N.B.Ming, Phys.Rev.B 42,3676 (1990)
7. Y.Suematsu, K.Iga, and S.Aral Proc. IEEE 80,383 (1992)
8. N.B.Ming, J.F.Hong and D.Feng, J.Mater. Sci 17, 1663 (1982)
9. Y.L.Lu, L.Mao and N.B.Ming, Opt. Lett 19,1037 (1994)
10. G.A.Magel, M.M.Fejer and R.L.Byer, Appl. Phys. Lett 56,108 (1980)
11. H.Ito, C.Takyu and H.Inaba, Electron.Lett. 27,1221 (1991)
12. L.E.Myers, M.Nada, etal. Appl.Phys.Lett 62,435 (1993)
13. L.E.Myers, M.M.Fejer et.al., Opt. Lett. 20,52 (1995)
14. S.N.Zhu, Y.Y.Zhu and N.B.Ming, J.Appl.Phys. 72,5481 (1995)
15. J.Webjorn, F.Laurell and G.Arvidsson, J.Lightwave Technol, 7, 1597 (1998)
16. E.J.Lim, M.M.Fejer and R.L.Byer, Electron. Lett. 25,174 (1989)
17. S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, N.B.Ming et al., Appl.Phys.Lett. 67,320 (1995)
18. J.D.Bierlein, D.B.Lanbacher et al., Appl.Phys.Lett. 56, 1725 (1990)

第二章 准周期三倍频超晶格的结构设计与实验验证

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。一维Fibonacci光学超晶格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。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，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，只能实现几个固定波长的变频。要实现透明窗口内任意给定波长的激光变频，必须对结构进行重新设计。本章重点介绍了利用变角度投影方法对准周期结构的设计，从理论和实验两个方面系统地研究了一维准周期光学超晶格中的激光变频效应。从而实现了从研究现有结构性质到设计新结构以满足实际需要的飞跃。

§ 2.1 历史回顾

介电体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。由于其微结构调制的尺度可与光波的波长比拟，介电体超晶格的倒格矢将参与光波的激发与传播过程，从而产生新的光学效应，故又被称为光学超晶格。现有的介电体微结构材料多指周期介电体超晶格材料，特别是二级非线性极化率周期调制的 LiNbO_3 (LN), LiTaO_3 (LT) 和其他铁电晶体。与大块均匀晶体不同，周期极化介电体超晶格将准位相匹配 (QPM) 技术应用于激光频率转换，利用周期结构提供的倒格矢来补偿非线性频率转换过程中介质色散造成的位相失配，使得频率转换效应得以增强。因此，此类材料已被广泛地应用于各种光参量过程，如激光的倍频、和频、光参量振荡和放大等。它可将激光频率从某一固定频率转换至一新频率或转换至可在某一频率范围内调谐，以满足不同应用领域对不同波长激光的需求。

近年来，准周期调制的介电体超晶格引起了人们的兴趣。我们又称这种结构为准周期光学超晶格 (QPOS)。实际上，二级非线性极化率的准周期调制也可完

成非线性光学过程中的位相匹配。这意味着可将 QPM 原理从周期结构推广到准周期结构。准周期结构的有序度低于周期结构，因而它能够提供更比周期结构更多的傅里叶分量，即在倒空间有更多的倒格矢。这样就可以在一块这样的晶体中实现多波混频，即多个参量过程的耦合。在这些过程中会因耦合而导致高次谐波（如三倍频、四倍频）的产生。

通常实现激光三倍频的方法有两种：一是利用三级非线性极化率（ $\chi^{(3)}$ ）直接产生三次谐波（相对于二次效应而言三级效应是很弱的）；二是利用二级非线性极化率（ $\chi^{(2)}$ ），即基波激光入射到串联的两块晶体，首先在在第一块晶体中倍频，此倍频光与未转换的基频光在第二块晶体中经过和频产生三倍频光。这一方案中，倍频过程与和频过程各自独立、没有耦合，他们分别满足各自的位相匹配条件。

准周期超晶格提供了另一种实现三倍频的方法，即利用二级非线性效应，通过耦合参量过程直接产生三倍频。在准周期超晶格中，由于可供选择的倒格矢很多，倍频与和频可以同时找到对应的倒格矢来实现准位相匹配并互相耦合，产生三倍频（即在产生倍频光的同时，倍频光就可以与基波光实现和频）。这意味着，在这种方案中，高次谐波激光是通过二级非线性过程产生的，其转换效率比利用高级非线性极化率（ $\chi^{(3)}$ 等）产生三倍频光高得多。利用这种方法，1997 年笔者利用室温极化技术在一块 LiTaO_3 中制备出了菲波那契序列准周期超晶格，并首次在该样品中实现了直接三倍频的高效绿光输出。（输出波长 523 nm，输出效率 23%）。

事实上对应于某个特定的准周期，用 QPM 的方法只能在特定波段内实现高效的三倍频输出。其原因在于，特定的准周期结构只能在特定波段上同时满足两个准位相匹配条件。在耦合 QPM 三倍频过程中，超晶格必须提供两个倒格矢来分别匹配 SHG 和 SFG 的波矢失配。这两个倒格矢的比率决定于基波的波长，并可以通过 Sellmeier 公式得到。另一方面，FOS 结构的倒格矢可以表示为： $2\pi \frac{m+n\tau}{D}$ 。这

里 $\tau = \frac{1+\sqrt{5}}{2}$ 是一个常数。 D 是平均结构参数。 m, n 为比较小的整数以保证比较大的有效非线性系数。当调整这些结构参数（ D, m, n ）时，这两个倒格矢的比率并没有改变。这就是问题的核心所在。因此要实现任意波长的三倍频输出，必须

对准周期的具体性质加以研究，并根据所要实现的波段来设计具体的准周期结构，使其倒易空间的倒格矢分布能满足QPM的要求。

§2、2 结构设计的思路和理论分析

结构调整的方案有多种，其中比较典型的一种方法是将光学超晶格推广到二维，使其可调节的结构参数更多。通过调整结构参数，可以同时实现多波长的SHG输出和设定波长的THG输出。但是，与一维结构相比，二维结构制备的困难要大的多。而且，其产生的THG光束与基波光非共线，极大的降低了最后的输出功率。因此，我们还是将注意力集中在一维结构上。

根据 R.K.P.Zia 1985年提出的投影理论，低维的准周期结构可以看成是一个高维的周期结构在某个方向上的投影。其中一维的二组元准周期结构可以由一个二维的四方点阵投影得到(见图2-1)。投影窗口为 x 轴和 y 轴的单元长度在 η 轴上的投影之和。 θ 为投影线与 x 轴的夹角，称为投影角。不同的 θ ，在 ξ 轴

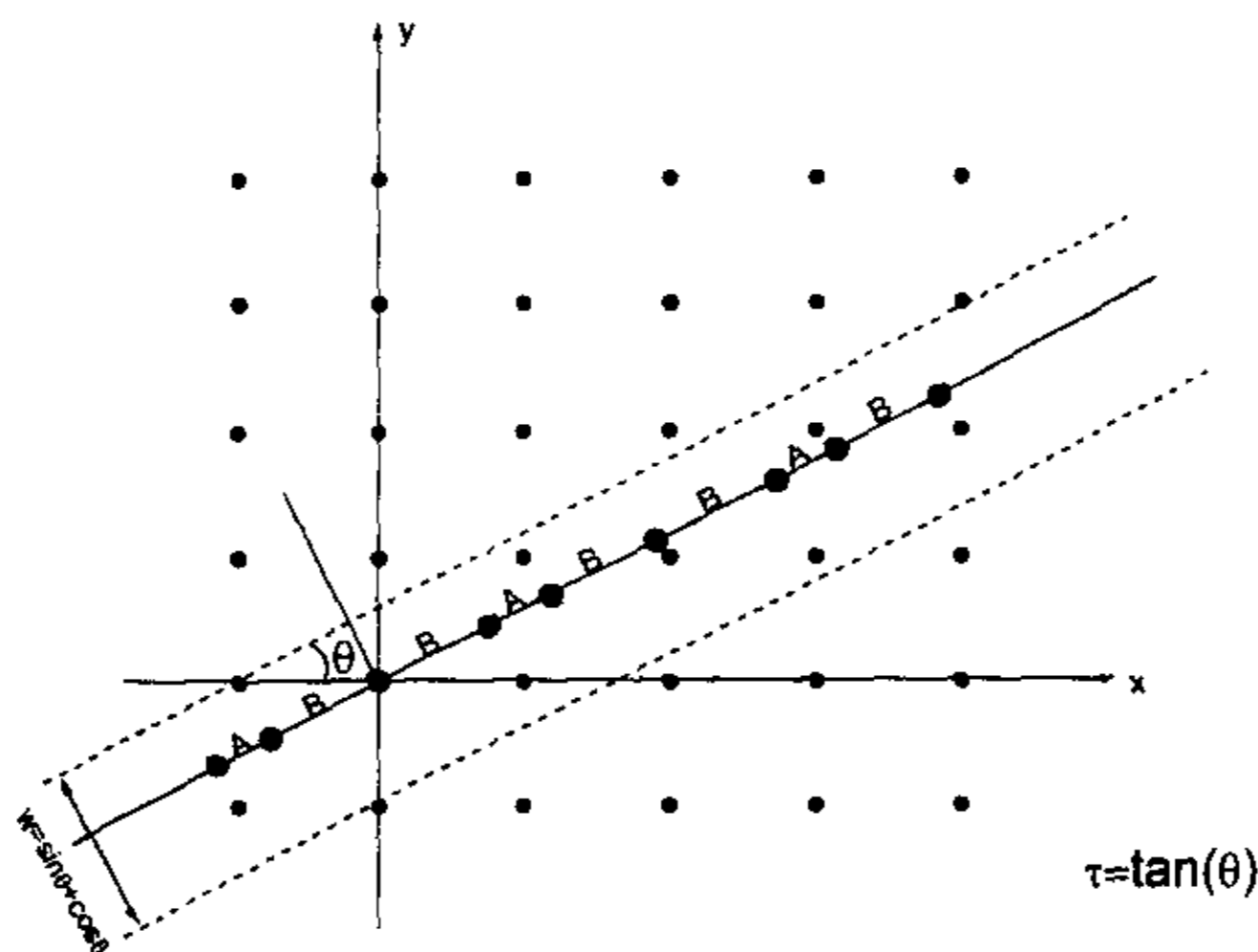


图 2-1, 投影法示意图

上得到的结构也不同。当 $\theta = \arctan \frac{1+\sqrt{5}}{2}$ 时，得到的就是著名的 Fibonacci 序列。

只要 $\tan\theta$ 是个无理数，就能保证得到的序列是一个准周期。因此可以说 QPOS 的结构有无穷多个，就可能找到一个能提供某两个特定倒格矢的一般的二组元准周期结构来实现某一特定波长的 THG 输出。

与 Fibonacci 结构相同，一般的二组元准周期结构也是由 A、B 两个基元按准周期序列排列构成， D_A 和 D_B 分别表示两个基元的宽度。每个基本单元由一对正负畴构成。我们设定基元中的正畴宽度都相同，用 l 表示。理论分析表明所有由投影方法得到的序列的倒格矢的表达式都是一样的：

$$G_{m,n} = 2\pi \frac{m+n\gamma}{D} \quad (2-1)$$

为了与 Fibonacci 序列相区别，我们这里用 γ 代替 τ 表示投影角 θ 的正切，以表示最一般的情况。

相对的傅里叶系数和非线性系数可以写为：

$$g_{m,n} = 2(1+\gamma) \frac{l}{D} \sin c\left(\frac{1}{2}G_{m,n}l\right) \sin c(X_{m,n}) \quad (2-2)$$

$$d_{\text{eff}(m,n)} = g_{m,n}d \quad (2-3)$$

其中 $D = \gamma D_A + D_B$ ， $X_{m,n} = \pi D^{-1}(1+\gamma)(mD_A - nD_B)$ ， d 是材料的非线性系数。（具体的推导过程见第三章。）这里， γ 不再是常数，而是可以根据需要设定。随着 γ 的改变，序列倒格矢的位置和大小都将发生变化。多出的这个变量使得结构设计更加灵活，从而实现任意波长的 QPM 三倍频输出成为可能。

在耦合三倍频过程中，存在两个位相失配：

$$\Delta k_1 = 4\pi(n_{2\omega} - n_\omega)/\lambda \quad (2-4)$$

$$\Delta k_2 = 2\pi(3n_{3\omega} - 2n_{2\omega} - n_\omega)/\lambda$$

λ 是基波波长， $n_\omega, n_{2\omega}, n_{3\omega}$ 分别为基波，倍频与三倍频的折射率。根据 QPM 理论，我们可以利用准周期结构的两个倒格矢来分别补偿倍频和和频的位相失配：

$$\begin{aligned} G_{m,n} &= \Delta k_1 \\ G_{m',n'} &= \Delta k_2 \end{aligned} \quad (2-5)$$

分别把 (2.1) 和 (2.4) 代入 (2.5)，得到：

$$2\pi \frac{m+n\gamma}{D} = 4\pi(n_{2\omega} - n_{\omega})/\lambda \quad (2-6)$$

$$2\pi \frac{m'+n'\gamma}{D} = 2\pi(3n_{3\omega} - 2n_{2\omega} - n_{\omega})/\lambda$$

调整参数 γ 、 D 、 m 、 n 、 m' 、 n' ，当以上方程组得到满足时，耦合三倍频过程中的 SHG 和 SFG 过程能够同时满足准位相匹配，从而产生高效的三倍频输出。

对于一个具体的三倍频过程， $\Delta k_1, \Delta k_2$ 为常量， m, n, m', n' 也可根据需要加以选取，也可认为是常量。因此，具体的结构参数可定出：

$$\gamma = \frac{m'\Delta k_1 - m\Delta k_2}{n\Delta k_2 - n'\Delta k_1} \quad (2-7a)$$

$$D = 2\pi \frac{mn' - m'n}{n'\Delta k_1 - n\Delta k_2} \quad (2-7b)$$

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：

$$\nabla^2 \bar{E} = \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \bar{P}}{\partial t^2}$$

$$\bar{P} = \bar{P}_L + \bar{P}_{NL} \quad (2-8)$$

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

为了能够得到最大的非线性系数，入射的基波光 ω_1 以及产生的二次谐波 ω_2 和三次谐波 ω_3 都是沿晶轴 x 向传播，沿 z 向偏振。因此耦合波动方程可简化为一维的情况。在缓变振幅近似下（即舍去振幅的二级微分项），考虑基波、二次谐波、三次谐波之间 $\omega_1 + \omega_1 \leftrightarrow \omega_2$ ， $\omega_1 + \omega_2 \leftrightarrow \omega_3$ 的能量耦合过程，可以得到下列波动耦合方程：

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = i\kappa_2 A_3 A_2^* e^{-i\Delta k_2 x} - i\kappa_1 A_2 A_1^* e^{-i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* e^{-i\Delta k_2 x} - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 e^{i\Delta k_1 x} \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 e^{i\Delta k_2 x} \end{cases} \quad (2-9)$$

其中：

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

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

$$d_{m,n} = d_{33} \cdot g_{m,n}$$

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

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

当位相失配 Δk_1 和 Δk_2 完全被倒格矢 $G_{m,n}$ 和 $G_{m',n'}$ 补偿时, $\Delta k_1'$, $\Delta k_2'$ 为零。方程(2-9)化简为:

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dx} = i\kappa_2 A_3 A_2^* - i\kappa_1 A_2 A_1^* \\ \frac{dA_2}{dx} = -i\kappa_2 A_3 A_1^* - \frac{i}{2} \kappa_1 A_1^2 \\ \frac{dA_3}{dx} = -i\kappa_2 A_1 A_2 \end{cases} \quad (2-10)$$

方程组 (2-10) 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。

在非线形材料中, 铌酸锂 (LN) 是用的较多的, 但它在室温下的抗损伤能力低, 从而其工作条件有严格限制。而且, 铌酸锂脆性大, 极化时容易被击碎, 其极化成核的均匀性也很难控制。相比起来, 钽酸锂 (LT) 能克服以上缺点, 并且我们的实验证明其同样能得到有效的倍频输出。因此在实验中我们选择了 LT 作为工作物质。

由于 LT 的折射率 n 随温度变化 (根据文献 10 提出的 Sellmeier 公式), 因此必须先确定出工作的温度。这里设其为 30°C 。我们任选了 $1.440 \mu\text{m}$ 作为入射波长, 倍频和和频的波矢失配分别为 $\Delta k_1 = 0.356 \mu\text{m}^{-1}$ 和 $\Delta k_2 = 1.004 \mu\text{m}^{-1}$, 通常的菲波那契及推广的菲波那契结构均无法提供倒格矢同时补偿这两个波矢失配。而如采用任意投影角的二组元准周期结构, 可以方便地实现这一点。为了能够得到最大的有效非线性系数, 通过公式 (2.1) 的计算, 我们用 $G_{1,1}$ 匹配倍频过程, 用 $G_{3,2}$ 匹

配和频过程, 即 $m=1, n=1, m'=3, n'=2$ 。再由公式 (2.7) 可得 $\gamma=0.2232, D=21.6\mu\text{m}$ 。这个结构的一部分可以表示成: $ABBBBBABBBBBAB\cdots$ 接下来的一步是在保持 γ 和 D 不变的条件下调节 D_A, D_B, l , 以获得较大的有效非线性系数。计算表明, 当 $D_A=13.12\mu\text{m}, D_B=18.65\mu\text{m}, l=9.31\mu\text{m}$ 时, 有效非线性系数最大。根据方程 (2-10), 在基波衰减的条件下, 我们还得到了基波光、倍频光和三倍频光转换效率随样品长度的变化关系, 见图 2.2。理论上产生 480nm 蓝光三倍频的效率可达到 50% 以上。

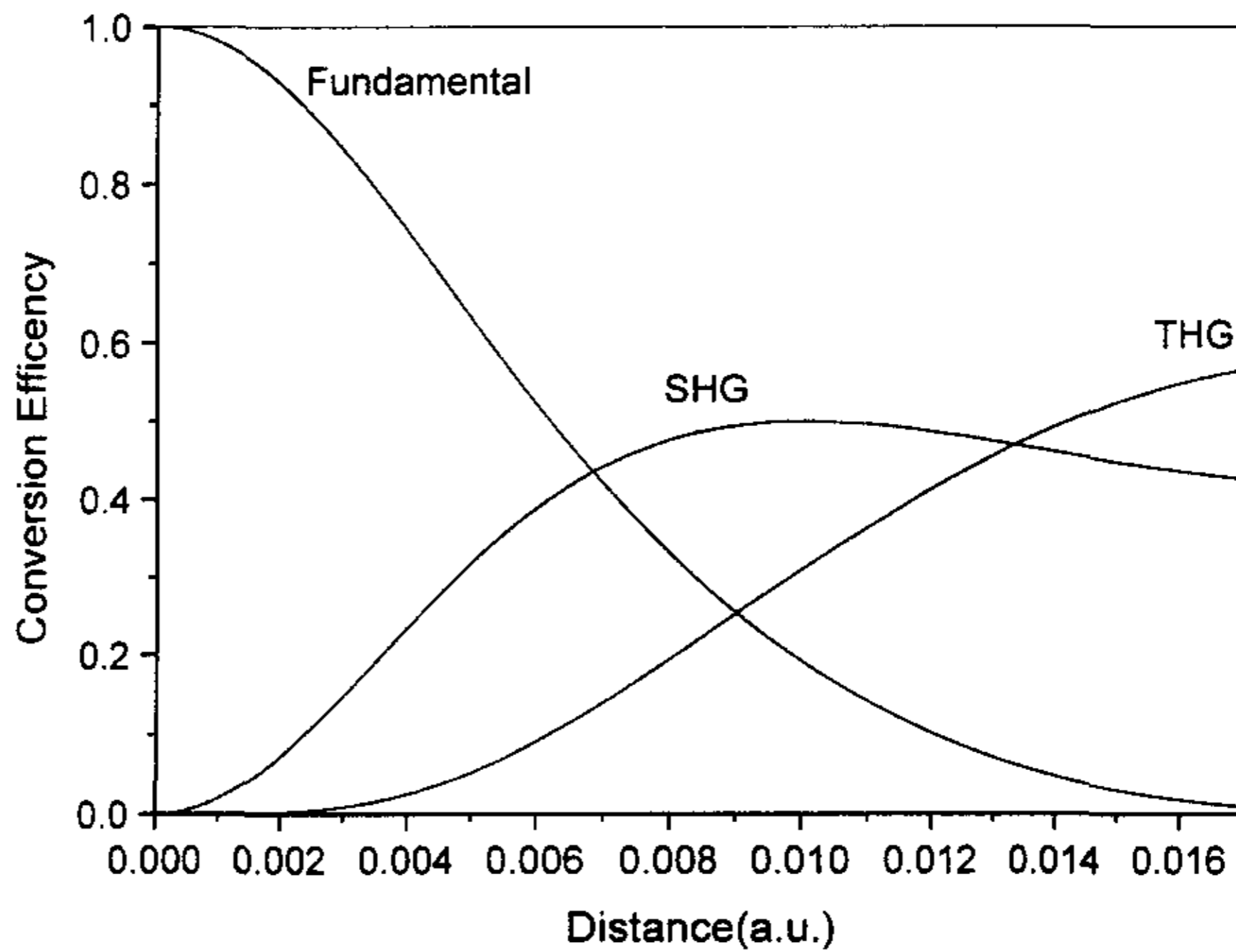


图2.2 基波、倍频、三倍频转换功率随样品长度的变化关系。结构参数为 $\gamma=0.2232, D_A=13.12\mu\text{m}, D_B=18.65\mu\text{m}, l=9.31\mu\text{m}$ 。

§2、2 LiTaO_3 准周期超晶格中的蓝光三倍频

在理论设计的基础上，我们通过室温极化的方法在Z切的 LiTaO_3 晶体上制备出了这种介电体准周期超晶格。样品的厚度为 0.5 mm ，总长度为 1.5 cm 。样品极化的情况可以通过氢氟酸腐蚀在显微镜下进行观测。基波光源是一个由钕铝石榴石激光器（Nd-YAG, NY81-10, Continuum, Santa Clara, California）泵浦的光参量放大器（OPO）。其输出波长可在 1080 nm 到 1520 nm 间调节，输出半宽度为 0.7 nm ，脉宽为 8 ns ，重复频率为 10 Hz 。为了能够利用LT的最大的非线性光学系数 d_{33} ，基波光束和谐波光束从LT晶体的x方向入射，其偏振方向沿晶体的Z方向。样品的温度用温控炉（Model OTC-PPLN-20, Super Optonics Lt）控制，以研究效率与相匹配温度间的关系。（该温控炉的温度可调范围为室温 $\sim 200^\circ\text{C}$ 。）具体的实验装置见图2-3。从OPO出来的基波光通过一个凸透镜聚焦（束腰直径约为 0.1 mm ）并沿着晶体的 x 轴耦合到样品中。输出的基波、二倍频和三倍频波长由一台三光栅光谱仪（SpectroPro-750, Acton Research Cooperation）进行标定。其光强用功率计测量，测量温度在 25°C 到 76°C 之间变化。

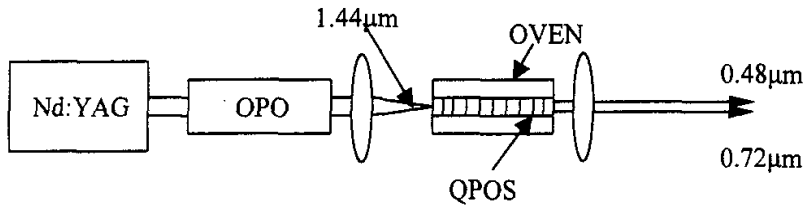


图2-3 实验装置示意图

图2.4是在实验中实际观测到的结果。有明显耀眼的蓝光输出。用光谱仪标定其波长恰好是 480 nm 。这说明确实有准周期的两个倒格矢参与了基波的倍频和基波与二倍频的和频的QPM过程并产生了高效的THG输出。由于基波光的波长为 1440 nm ，处于远红外区域，因此用肉眼无法分辨，只能用光谱仪进行标定。

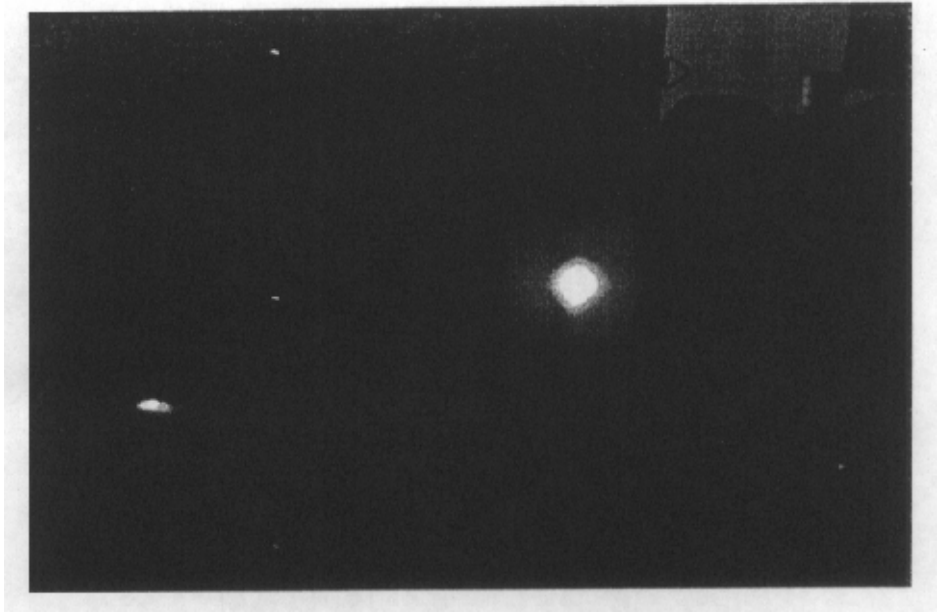


图 2-4 480nm 的蓝光三倍频输出。基波为由 OPO 产生的 1440nm 的远红外光

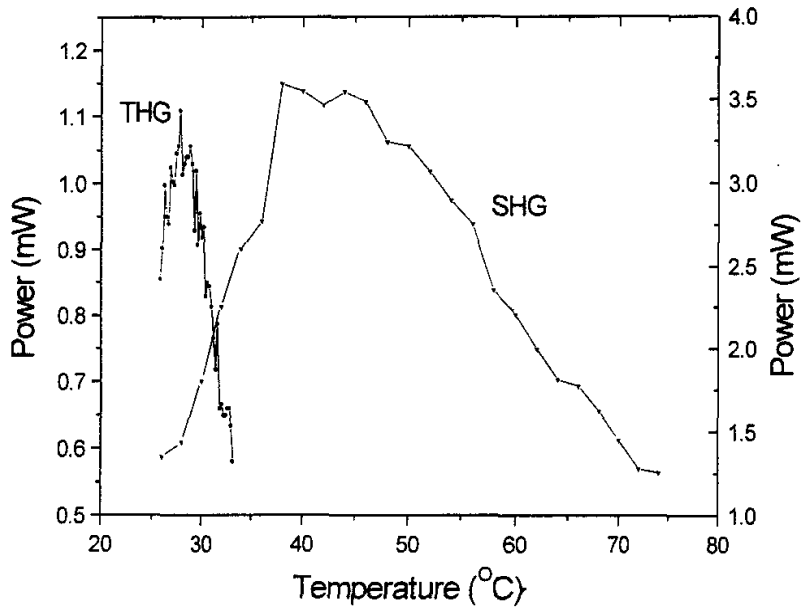


图 2-5 二倍频、三倍频平均输出功率随温度的变化。平均基波功率为 4.8mW

图2-5是实验上测得的SHG和THG的效率与温度的关系。当温度为 27.8°C ，基波光功率为 4mW 时，测得 1.10mW 的波长为 480nm 三倍频蓝光输出，其转换效率最高，为 27% 。当温度升高到 44°C ，二倍频红外光(720nm)的效率达到最高，为 73% 。改变基波光的功率，我们还测得最高的THG输出为 4mW ，相对应的基波功率为 20mW 。SHG和THG的相匹配温度分别对应于 44°C 和 27.8°C 。与理论设计的 30°C 都有所偏差。

可能由于实验样品的折射率与文献给出的Sellmeier公式有偏差，实验上得到的SHG和THG的最高峰并不重合，这意味着基波和倍频波之间位相失配没有得到完全的补偿。正因为如此，只有一部分二倍频转化为三倍频，从而使得实际测得的二倍频的效率比理论值高而三倍频的效率比理论值低（理论值可从图2-2中读出）。而且，与传统的通过串联的两块晶体分别实现两个光参量过程来实现THG的方法相比，通过QPM的方法实现THG对材料的折射率的精确度要求更高，也更敏感。Sellmeier公式的细小偏差都会破坏QPM条件，导致位相失配，使得倍频和三倍频的最高峰不重合，降低转换效率。而在极化过程中产生的结构参数的偏差由于不会带来位相失配，对最后的结果的影响不大。

从图2.5还可以看出，实验上测得的SHG和THG的温度带宽的比率为4。理论上考虑了位相失配后计算的结果比率为3。两者不同的原因是，理论计算考虑的是没有带宽的平面波，而实验上聚焦到样品上的基波光的带宽为 0.7nm 。

§2、3 LiTaO₃准周期超晶格中的倍频谱的分析

除了可以直接获得高效的三倍频转换外，由于准周期结构具有丰富的倒格矢，通过调谐基波波长，还可实现多个频率的倍频，并有可观的转换效率。在同一块样品中，我们调节入射光的波段，从1200 nm 到1520 nm，结果找到了七个最强的二倍频输出，其波长从593 nm 到759 nm，效率在 8% 到 73% 之间（见表2-1）。这七个峰的位置与理论计算的结果符合的很好（见图2-6）。因此此类材料亦可用于制作多色激光倍频器件，实现在一块样品上的多波长输出。

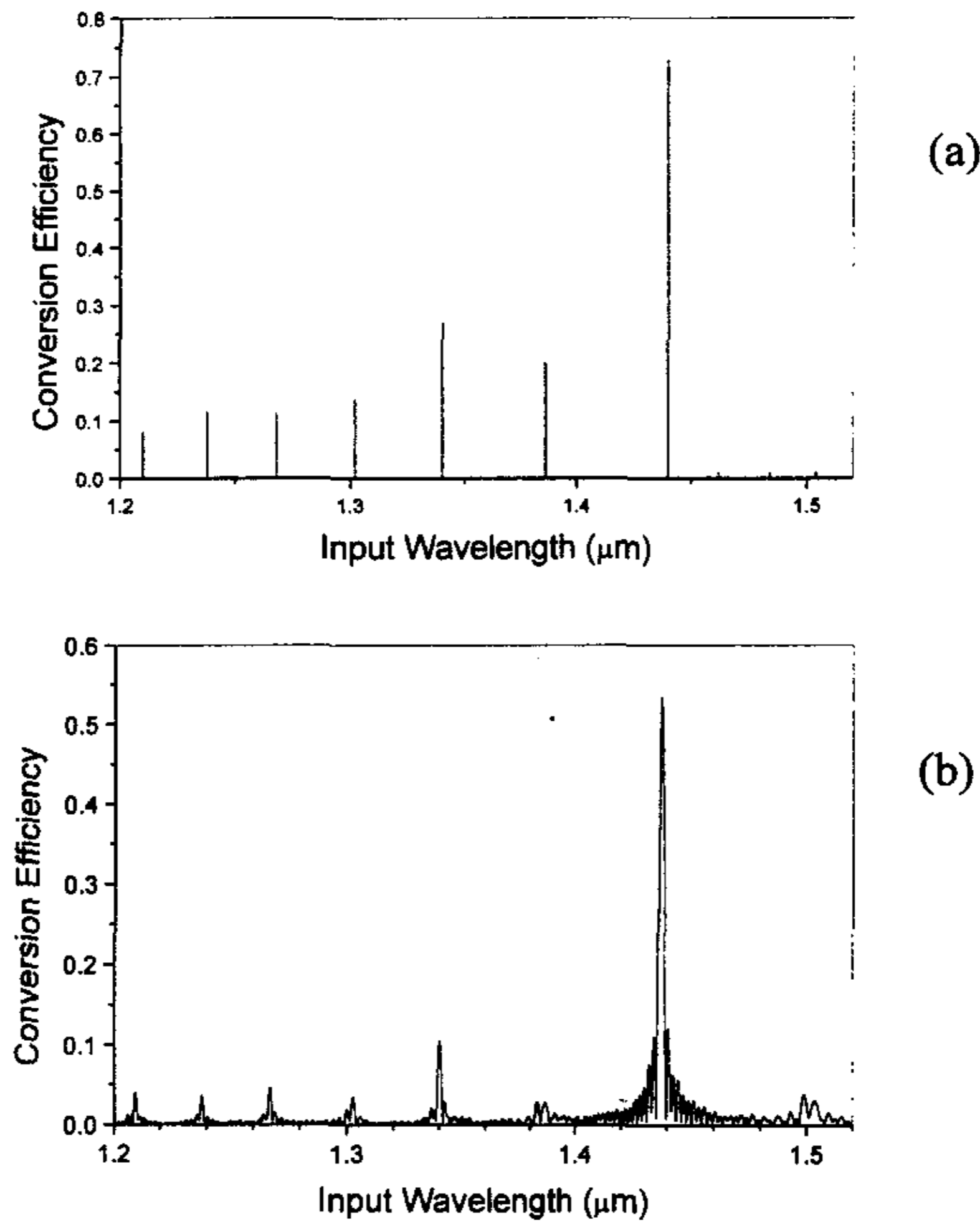


图2-6 准周期超晶格的倍频谱(或准周期超晶格对不同波长的倍频效率)的理论值(a)和实验值(b) 基波的选取范围为1.20 μm 到1.52 μm 。

表2-1 二倍频谱及其测得的转换效率

Fundamental $\lambda(\mu\text{m})$	1.210	1.238	1.268	1.302	1.340	1.386	1.440
SHG Efficiency	8%	11%	11%	13%	27%	20%	73%
Reciprocal	[1,4]	[2,-1]	[1,3]	[2,-2]	[1,2]	[0,6]	[1,1]
Fourier coefficient	0.020	0.036	0.046	0.036	0.106	0.025	0.536

§2、4 355nm紫外三倍频

随着激光技术，紫外激光器越来越引起了人们的注意。光存储是信息高速公路关键领域之一，其高密度DVD关键技术之一就是全固态紫外激光器，利用波长越短的激光进行光盘刻录，在盘上打的孔越小，因而光盘的存储量就越大。此外紫外激光器在分色印刷、三维存储等方面都有广泛的应用。由于准位相匹配理论的灵活性，我们同样利用上述理论，设计并制备了LT的准周期超晶格，并在实验中观测到了355nm的紫外光输出。

我们首先设计的工作温度为25°C，倍频与和频的波矢失配分别为 $\Delta k_1 = 0.802 \mu\text{m}^{-1}$ 和 $\Delta k_2 = 2.894 \mu\text{m}^{-1}$ 。我们同样用 $G_{1,1}$ 匹配倍频过程，用 $G_{3,2}$ 匹配和频过程，再由公式 (2.7) 可得 $\gamma = 1.549$ ， $D_A = 8.6 \mu\text{m}$ ， $D_B = 6.64 \mu\text{m}$ ， $l = 3.3 \mu\text{m}$ 。图2-7为以钇铝石榴石脉冲激光器为光源，测得的532nm的SHG和355nm的THG的温度带宽。在实

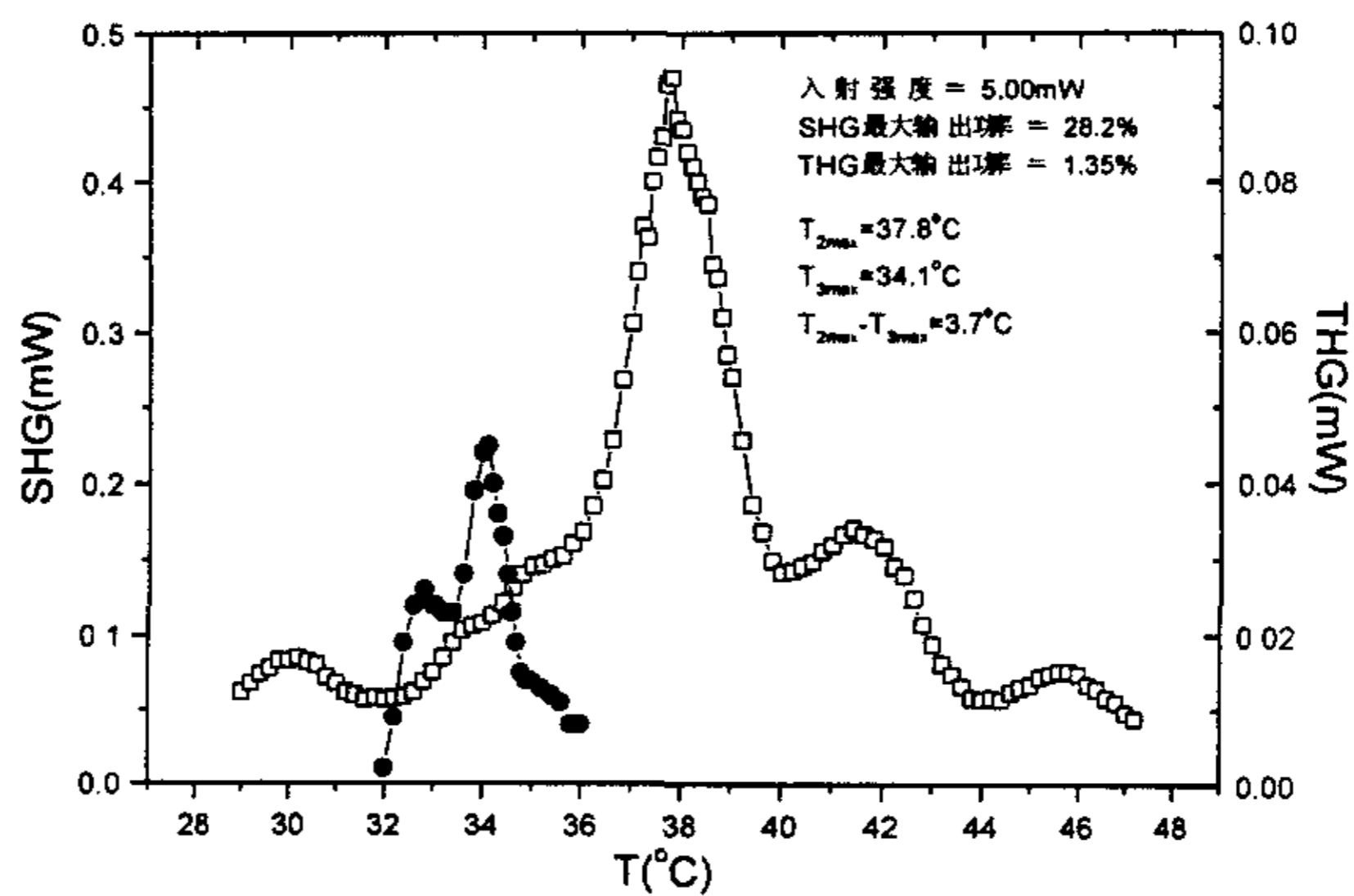


图 2-7 532nm 倍频光和 355nm 三倍频光的温度带宽

验中我们还注意到由于光折变效应，输出的光斑质量不好，模式不稳定。

从图中我们可以看出355nm的THG和532nm的SHG的匹配温度没有重合，两者相差 3.7°C ，使得THG的转换效率降低（仅为1.35%），输出的光强为0.067mW。为此，将工作温度上升到了 110°C ，降低了光折变现象对折射率的影响，并对折射率公式进行了修正。这样，倍频和和频的波矢失配分别为 $\Delta k_1 = 0.817\mu\text{m}^{-1}$ 和 $\Delta k_2 = 2.971\mu\text{m}^{-1}$ 。用 $G_{1,1}$ 匹配倍频过程，用 $G_{3,2}$ 匹配和频过程，由公式(2.7)可得 $\gamma = 1.744$ ， $D_A = 8.4\mu\text{m}$ ， $D_B = 6.45\mu\text{m}$ ， $l = 3.2\mu\text{m}$ 。

我们用LD泵谱的Nd:YVO₄准连续激光器作为光源，具体实验装置见图2-8。最后我们在 110°C 时，测到了21mW的355nm紫外光的输出，转换效率为2.7%。同时还测到了344mW的532nm绿光，转换效率为45.4%。该实验装置为全固化准连续355nmUV激光器的原型。

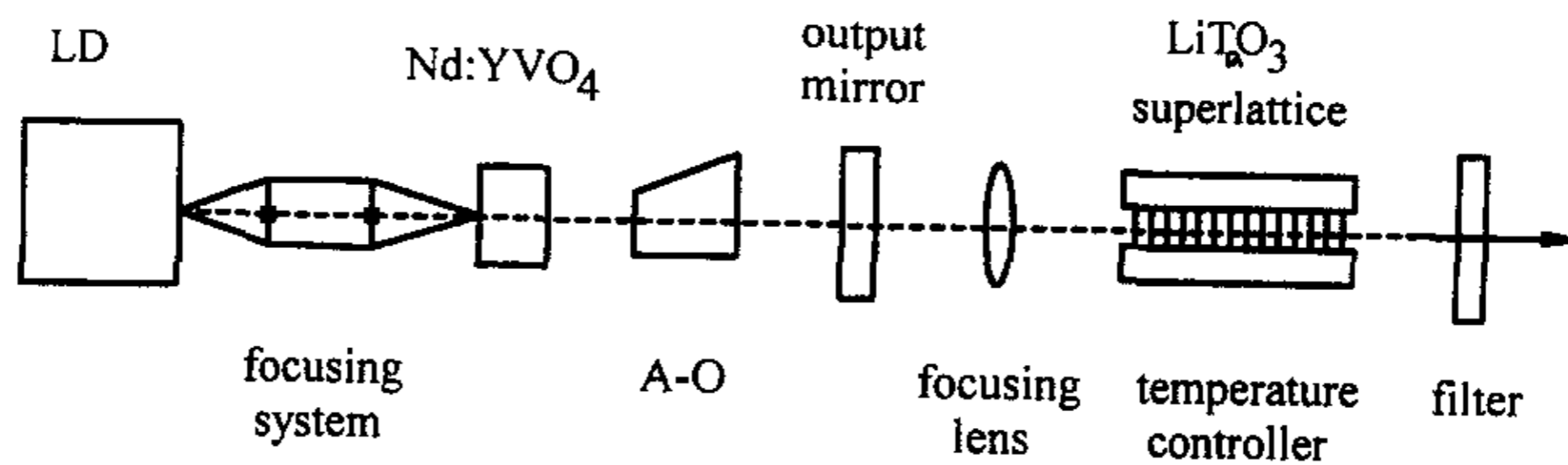


图 2-8 全固化准连续 UV 激光器装置图

【参考文献】

1. J.A.Armstrong; N.Bloembergen; J.Ducuing; and P.S.Pershan, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962)
2. A.Arie, G.Rosenman, V.Mahal, A.Skliar, M.Oron, M.Katz, D.Eger, Opt. Commun **142**, 265 (1997)
3. G.D.Miller, R.G.Batchko, W.M.Tulloch, D.R.Weise, M.M.Fejer, R.L.Byer, Opt. Lett. **22**, 1834 (1997)
4. S.Wang, V.Pasiskevicius, F.Laurell, H.Karlsson, Opt. Lett. **23** 1883 (1998)
5. I.Yokohama, M.Asobe, A.Yokoo, H.Itoh, T.Kaino, J. Opt. Soc. Am B **14** 3368 (1997)
6. L.E.Myers, W.R.Bosenberg, IEEE J Quantum Elect. **33**, 1663 (1997)
7. K.ElHadi, M.Sundheimer, P.Aschieri, P.Baldi P, M.P.DeMicheli, D.B.Ostrowsky, F.Laurell, J Opt. Soc. Am B **14**, 3197 (1997)
8. S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, and N.B.Ming, Science. **278**, 843 (1997)
9. R.K.P.Zia and W.J.Dallas, J. Phys. A. **18**, L341 (1985)
10. J.P.Meyn, M.M.Fejer, Opt. Lett. **22**, 1214 (1997)
11. 祝世宁博士论文, 周期、准周期 LiTaO_3 超晶格设计制备及激光变频效应的研究 (1996)

第三章 三组元准周期光学超晶格的研究

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。利用数值 Fourier 变换和投影理论分析了三组元 Fibonacci 结构，得到了 K 组元准周期结构的傅里叶谱的解析表达式。在这个基础上，我们理论证实了在三组元结构中可以发生大于两个的光参量过程，如实现直接的五倍频输出。

§3.1 准周期结构的投影理论概论

凝聚态物理学中一个激动人心的发展是准晶的发现。实验上，Shechtman 等人首次在急冷凝固的 Al-Mn 合金中发现了五次对称性（1984 年）；理论上，Levine 和 Steinhardt 发现了一种新的结构，其傅里叶谱和实验观测到的图案可以相对应（1984）。而且，他们都同时指出，这些结构并不是孤立的，它们都属于一类新的有序结构。因此他们把它称之为“准晶”。由于准晶中不再有明显的平移对称性，传统的 Bloch 理论不再适用。这给准晶的研究提出了新的课题。准晶的傅里叶谱中出现的 δ 函数给了人们启发，这意味着在准晶中存在有“隐含的对称性”。

Zia 和 Dallas 等人于 1985 年提出了投影理论，指出一个 D 维的准周期结构可以由一个 N 维 ($D < N$) 的超空间周期点阵在 D 空间的投影得到，其中高维空间的维度对应于准周期结构中的组元数。D 维准周期的“隐含的对称性”就体现在 N 维空间的周期点阵上。对于一维二组元准周期结构，可以由二维正方格子向某一特定方向的直线投影而得到（见图 2-1）。实际上确实如此。我们只要在正方格子内做一斜率为 $\tau=0.618$ 的直线，与直线距离在选定的窗口内的格点向直线投影的垂足就构成著名的 Fibonacci 序列。

通过投影可以得到许多新的准周期序列，还可以求出准周期序列的通项及倒格矢分布。这使得准周期序列的研究能够更加的灵活，因为对于一般的准周期序列不存在象 Fibonacci 序列那样的递推公式，此时就只能通过投影来得到。下面我们

就以一维二组元准周期结构为例，具体介绍投影法的推导过程。

如图 2-1，二维周期结构可以表示成：

$$U_o(x, y) = \sum \delta(x-j)\delta(y-l)/(4\pi^2) \quad (3-1)$$

其中的求和包括所有的格点 (j, l) 。

则，投影在 ξ 轴上的准周期序列可以表示成：

$$Q(\xi) = \int_{-\infty}^{\infty} d\eta R(\eta)U_o(\xi, \eta) \quad (3-2)$$

其中， $U_o(\xi, \eta) = U_o(\xi \cos \theta - \eta \sin \theta, \xi \sin \theta + \eta \cos \theta)$ ，

$$R(\eta) = \begin{cases} 1 & (\text{if } |\eta| < w), \\ 0 & (\text{otherwise}), \end{cases}$$

$w = \frac{1}{2}(\cos \theta + \sin \theta)$ ，为投影的窗口，方向垂直于 ξ 轴。凡是落在这个区间内的格点都投影到 ξ 轴上。

根据卷积定理，

$$Q(\xi) = \left[\int U(\xi, \eta)R(\eta)e^{ip\eta} d\eta \right]_{p=0} = S(-p) * M(\xi, p)$$

其中 $S(p)$ 和 $M(\xi, p)$ 分别是 R 和 U 的傅里叶变换。

定义 $F(k)$ 为 $Q(\xi)$ 的傅里叶变换，则：

$$F(k) = \iint s(-p)M(\xi, p)e^{ik\xi} d\xi dp = \int S(-p)V(k, p)dp \quad (3-3)$$

$$\begin{aligned} V(k, p) &= \int M(\xi, p)e^{ik\xi} d\xi = \iint U(\xi, \eta)e^{ip\eta} e^{ik\xi} d\xi d\eta \\ &= \iint U_o(\xi \cos \theta - \eta \sin \theta, \xi \sin \theta + \eta \cos \theta) e^{ip\eta} e^{ik\xi} d\xi d\eta \end{aligned} \quad (3-4)$$

只有在 $\xi \cos \theta - \eta \sin \theta = n$ ， $\xi \sin \theta + \eta \cos \theta = m$ 时， U_o 才有值。

所以有：

$$\begin{cases} \xi = n \cos \theta + m \sin \theta \\ \eta = -n \sin \theta + m \cos \theta \end{cases} \quad (3-5)$$

$$\begin{aligned} V(k, p) &= \sum_{n, m} e^{ik(n \cos \theta + m \sin \theta)} e^{ip(-n \sin \theta + m \cos \theta)} \\ &= \sum_{n, m} \delta[k - 2\pi(n \cos \theta + m \sin \theta)] \delta[p - 2\pi(-n \sin \theta + m \cos \theta)] \end{aligned} \quad (3-6)$$

$$S(-p) = \int_{-\infty}^{\infty} R(\eta)e^{ip\eta} d\eta = \int_{-w}^w e^{ip\eta} d\eta = \frac{2 \sin pw}{p} = 2w \text{sinc}(pw) \quad (3-7)$$

因为只有当 $p = p_{n,m} = 2\pi(-n\sin\theta + m\cos\theta)$ 时 F 才不为零。则设

$$\begin{aligned} X_{n,m} &= p_{n,m}w = 2\pi(m\cos\theta - n\sin\theta)\frac{1}{2}(\sin\theta + \cos\theta) \\ &= \pi(mD_A - nD_B)(D_A + D_B) = \pi(mD_A - nD_B)D_B(1 + \tau) \\ &= \pi D^{-1}(1 + \tau)(mD_A - nD_B) \end{aligned} \quad (3-8)$$

这里，假定四方格子的单位长度为 1，所以 $D_A = \cos\theta$ ， $D_B = \sin\theta$ 。 $\tau = \frac{D_A}{D_B}$

可求得： $D = \tau D_A + D_B = D_B^{-1}$

$$\text{所以： } F(k) = \sum_{n,m} 2w \text{sinc}(X_{n,m}) \delta(k - k_{n,m}) \quad (3-9)$$

可以看出，基矢的位置位于：

$$G_{n,m} = 2\pi(n\cos\theta + m\sin\theta) = 2\pi\sin\theta(n\tau + m) = 2\pi D^{-1}(n\tau + m) \quad (3-10)$$

基矢的峰值为：

$$g_{n,m} = 2w \text{sinc} X_{n,m} = (1 + \tau)D^{-1} \text{sinc} X_{n,m} \quad (3-11)$$

如果考虑到每个单元内分为正负畴，则

$$g_{n,m} = (1 + \tau)D^{-1} \text{sinc}\left(\frac{1}{2}G_{n,m}l\right) \text{sinc}(X_{n,m}) \quad (3-12)$$

这里的 l 为每个单元中正畴的长度。

§3、2 三组元准周期结构的投影理论

一个一般的三组元准周期序列包含三个基本单元 A , B , C , 每个单元都由一对正负畴组成 (见图 3-1)。 D_A , D_B , D_C 分别表示 A 、 B 、 C 的长度, l_C 表示单元内正畴的长度。

定义

$$\eta_1 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|A|_n}{|B|_n}; \quad \eta_2 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|A|_n}{|B|_n}; \quad \eta_3 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{|C|_n}{|C|_n} = 1 \quad (3-13)$$

$|A|_n$ 、 $|B|_n$ 和 $|C|_n$ 分别表示单元 A 、 B 、 C 在序列中的数目, n 表示序列的总单元数。

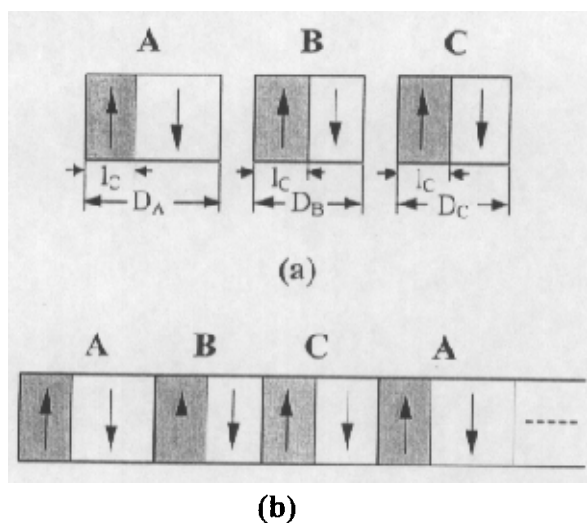


图 3-1 (a) 三组元准周期三个基本单元 A 、 B 、 C 。箭头表示畴的取向。(b) 三组元准周期结构示意图

与二组元准周期类似, 三组元准周期结构也可以通过投影理论由一个立方周期点阵投影得到。投影示意图见图 3-2。我们首先定义一个直角坐标系 $X: \{x, y, z\}$, 原点为 O 。在这个坐标系中分布着周期的立方点阵, 其晶格常数设为 1。定义另一个直角坐标系 $X': \{\eta, \xi, \gamma\}$, 原点也在 O 处, 并选择 γ 轴为投影线。定义 α_1 、 α_2 、 α_3 为投影线分别与 x 、 y 、 z 轴的夹角。可以证明如果 η_1 、 η_2 为无理数, 则除了 O 点外, 立方点阵的其他格点都不会落在投影线上。这样投影的结构将是一个准周期序列。

立方点阵的格点可以用 $U_0(x, y, z)$ 来表示:

$$U_0(x, y, z) = \sum \delta(x-m)\delta(y-n)\delta(z-l)/(2\pi)^3 \quad (3-14)$$

其中的求和也包括对所有的格点 (m, n, l) 。

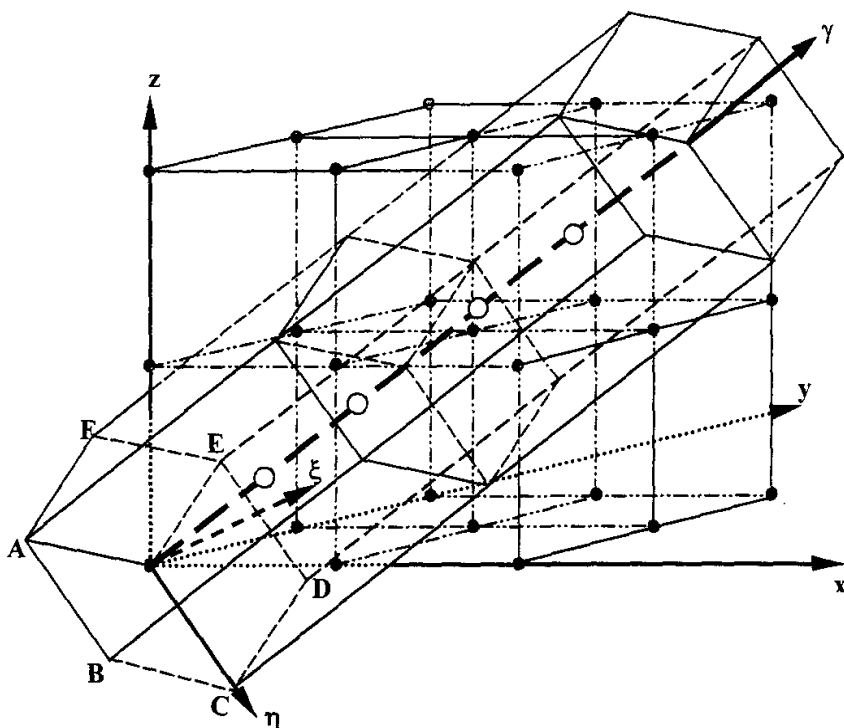


图 3-2 三组元准周期结构投影示意图

下面的任务是必须确定投影的窗口。只有在这个窗口内的格点才可以被投影到 γ 轴上。在考虑二维情况时，我们选择的窗口是由两根轴在垂直投影线的方向投影所形成的一条线段。由此联想到三维情况也应该类似，应该是由三根轴在垂直投影线的方向投影所形成的一个六边形 ABCDEF（见图 3-3）。其中 X' 、 Y' 、 Z' 分别表示 X 、 Y 、 Z 轴在 ξ - η 面上的投影。将这个六边形 ABCDEF 沿着 γ 方向延伸形成一个六边柱，所有落在这个柱内的格点都可以投影到 γ 轴上。投影得到的序列是由三个长度不等的基本单元构成的，并且其长度满足 $D_a : D_b : D_c = \eta_1 : \eta_2 : \eta_3$ 。这个序列就是三组元的准周期序列，其投影点的分布是准周期的。

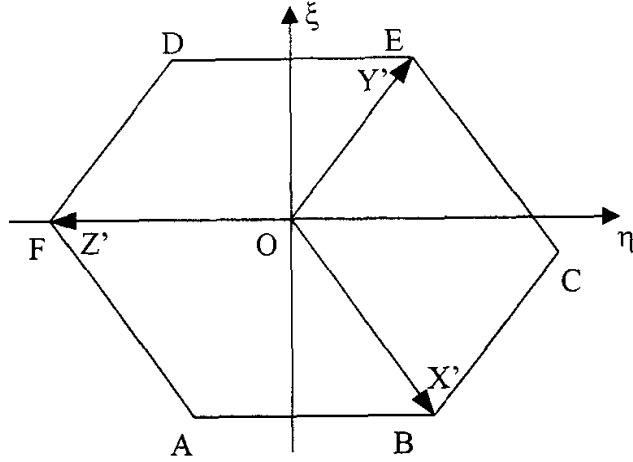


图 2-3 投影平面示意图

投影方程可以写为：

$$R(\eta, \xi) = \begin{cases} 1 & (\text{if } (\eta, \xi) \in PA) \\ 0 & (\text{otherwise}) \end{cases}, \quad (3-15)$$

则三组元准周期序列可以表示为：

$$Q(\gamma) = \int d\eta d\xi R(\eta, \xi) U(\eta, \xi, \gamma) = S(p, k) * M(\gamma, p, k) \quad (3-16)$$

其中， S 、 M 分别是 R 和 U 的傅里叶变换。

通过根据直角坐标系的坐标变换可求得：

$$\begin{cases} \eta = x \cos \phi \cos \psi + y \sin \phi \cos \psi - z \sin \psi \\ \xi = -x \sin \phi + y \cos \phi \\ \gamma = x \sin \psi \cos \phi + y \sin \phi \sin \psi + z \cos \psi \end{cases} \quad (3-17)$$

$$\sin \phi = \frac{\cos \alpha_2}{\sqrt{1 - \cos^2 \alpha_3}}$$

$$\sin \psi = \sqrt{1 - \cos^2 \alpha_3}$$

同样定义 $F(G)$ 为 $Q(\gamma)$ 的傅里叶变换，则 $F(G)$ 可表示为：

$$\begin{aligned} F(G) &= \iiint S(p, k) M(\gamma, p, k) e^{iG\gamma} dp dk d\gamma \\ &= \iint S(p, k) V(G, p, k) dp dk \end{aligned} \quad (3-18)$$

$$\begin{aligned}
 V(G, p, k) &= \int M(\gamma, p, k) e^{ik\gamma} d\gamma = \iiint [U_o(\eta, \xi, \gamma) e^{i\eta\eta} e^{i\xi\xi} e^{i\gamma\gamma} d\eta d\xi d\gamma \\
 &= \sum_{n,m,l} \delta [k - 2\pi(m \cos \psi \cos \phi - n \sin \phi + l \sin \psi \cos \phi)] \cdot \delta [p - 2\pi(-m \sin \psi + l \cos \psi)] \\
 &\quad \cdot \delta [G - 2\pi(m \cos \psi \sin \phi + n \cos \psi + l \sin \psi \sin \phi)] \quad (3-19)
 \end{aligned}$$

很明显，只有在

$$\begin{cases} k = k_{n,m,l} = 2\pi(m \cos \psi \cos \phi - n \sin \phi + l \sin \psi \cos \phi) \\ p = p_{n,m,l} = 2\pi(-m \sin \psi + l \cos \psi) \\ G = G_{n,m,l} = 2\pi(m \cos \psi \sin \phi + n \cos \psi + l \sin \psi \sin \phi) \end{cases} \quad (3-20)$$

时， $F(G)$ 才不为零。

$S(p, k) = \iint R(x, y) e^{-ip\eta} e^{-ik\xi} d\eta d\xi$ 是对投影面 ABCEDF 的完全二重傅里叶积分。最后的计算结果是：

$$S_{m,n,l} = \frac{|S_1 + S_2 + S_3|}{2\pi(-m \cos \alpha_2 + n \cos \alpha_1)(\cos \alpha_1 + \cos \alpha_2 + \cos \alpha_3)}; \quad (3-21)$$

$$S_1 = \cos \alpha_1 \cos \alpha_3 (\beta - \gamma) \operatorname{sinc} \frac{\alpha}{2} \operatorname{sinc} \frac{\beta - \gamma}{2};$$

$$S_2 = \cos \alpha_2 \cos \alpha_3 (\gamma - \alpha) \operatorname{sinc} \frac{\beta}{2} \operatorname{sinc} \frac{\gamma - \alpha}{2}; \quad (3-22)$$

$$S_3 = (1 - \cos^2 \alpha_3) (\alpha - \beta) \operatorname{sinc} \frac{\gamma}{2} \operatorname{sinc} \frac{\alpha - \beta}{2}.$$

最后 $F(G)$ 可以写为：

$$F(G) = \sum_{m,n,l} S_{m,n,l} \delta [G - 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3)] \quad (3-23)$$

这就表示三组元准周期的傅里叶谱是由一系列的 Delta 函数构成的。Delta 函数的位置是：

$$G_{n,m,l} = 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3). \quad (3-24)$$

$D = \eta_1 D_A + \eta_2 D_B + \eta_3 D_C$ 为平均结构参数。

上式中出现的 α, β, γ 分别代表：

$$\begin{aligned}
 \alpha &= 2\pi [m(\cos^2 \alpha_2 + \cos^2 \alpha_3) - n \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 - l \cos \alpha_1 \cos \alpha_3] \\
 \beta &= 2\pi [-m \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 + n(\cos^2 \alpha_1 + \cos^2 \alpha_3) - l \cos \alpha_2 \cos \alpha_3] \\
 \gamma &= 2\pi [-m \cos \alpha_1 \cos \alpha_3 - n \cos \alpha_2 \cos \alpha_3 + l(\cos^2 \alpha_1 + \cos^2 \alpha_2)] \quad (3-25)
 \end{aligned}$$

考虑每个单元内的正负畴，最后的傅里叶变换的表达式可以写为：

$$g_{m,n,l} = 2S_{m,n,l} \frac{l_c(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3)}{D} \text{sinc}\left(\frac{G_{m,n,l} l_c}{2}\right) \delta\left[G_{m,n,l} - 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l\eta_3)\right] \quad (3-26)$$

其中的 $2S_{m,n,l} \frac{l_c(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3)}{D} \text{sinc}\left(\frac{G_{m,n,l} l_c}{2}\right)$ 是傅里叶系数，Delta 函数表示的是每个倒格矢的位置。

在上面的公式里，傅里叶系数的位置和大小完全决定于投影线与坐标的夹角。这时结构参数 D_A , D_B , D_C 也是完全由投影角决定的。而考虑到更一般的情况，序列中的结构参数应该可以改变，这就必须研究在一个长方体内的投影，即：点阵常数 $a \neq b \neq c$ 。因为序列的排布是由投影线与坐标夹角决定的，而改变 a , b , c 的值，就可以改变 D_A , D_B , D_C 的值。所以必须把公式中的 α_1 , α_2 , α_3 替换成 D_A , D_B , D_C 才是最一般的情况。

替换后，式 (3-24) 表示为：

$$S_{m,n,l} = \frac{|S_1 + S_2 + S_3|}{2\pi(mD_C - lD_A)(\eta_1 + \eta_2 + \eta_3)} \quad (3-27)$$

$$S_1 = D_C \eta_2 (\beta - \gamma) \text{sinc} \frac{\alpha}{2} \text{sinc} \frac{\beta - \gamma}{2}$$

$$S_2 = D_A \eta_2 (\gamma - \alpha) \text{sinc} \frac{\beta}{2} \text{sinc} \frac{\gamma - \alpha}{2}$$

$$S_3 = (D_B \eta_2 - D)(\alpha - \beta) \text{sinc} \frac{\gamma}{2} \text{sinc} \frac{\alpha - \beta}{2} \quad (3-28)$$

其中

$$\alpha = 2\pi D^{-1} [\eta_1 (lD_A - mD_C) + \eta_2 (lD_B - nD_C)]$$

$$\beta = 2\pi D^{-1} [\eta_3 (mD_C - lD_A) + \eta_2 (mD_B - nD_A)] \quad (3-29)$$

$$\gamma = 2\pi D^{-1} [\eta_3 (nD_C - lD_B) + \eta_1 (nD_A - mD_B)].$$

考虑一种更为特殊的情况：构成每个结构单元的不再是正负畴，而是两种某个物理性质不同的两种材料 a , b 。分别定义这两种材料的物理参数为 σ_a 和 σ_b 。在准周期结构中，这个物理参数可以表达为（见图 2-4）：

$$\sigma(x) = \frac{1}{2}(\sigma_a + \sigma_b) + \frac{1}{2}f(x)(\sigma_a - \sigma_b) \quad (3-30)$$

其中

$$f(x) = \begin{cases} +1, & x \text{ 在 } a \text{ 块中,} \\ -1, & x \text{ 在 } b \text{ 块中.} \end{cases} \quad (3-31)$$

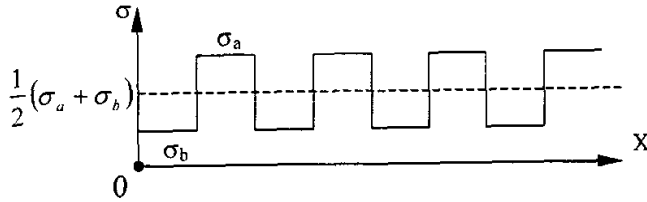


图2-3 物理参量 σ 在由两种不同材料构成的超晶格中的分布示意

注意到公式(3-29)中的第一部分是常数，在傅里叶变换的过程中它将变成一个在 $G_{m,n,l}=0$ 位置的 Delta 函数。因此，不会改变傅里叶谱的结构，还可以用(3-26)和(3-27)来表示。

我们曾经研究过一种特殊的三组元准周期结构： $ACBAACACBACBAACBAAC\dots$ 。它可以用一个迭代公式来生成： $A \rightarrow AC; C \rightarrow B; B \rightarrow A$ 。 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：

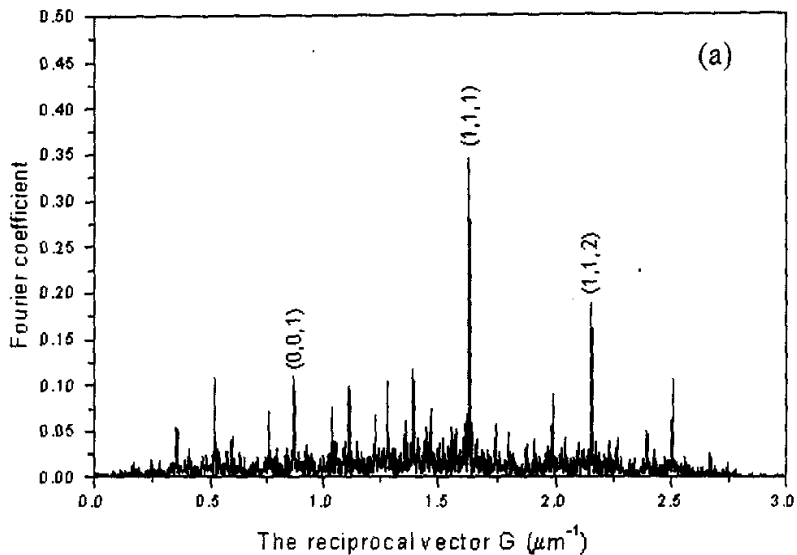
$$\begin{aligned} \eta_1 &= \frac{1}{3} + \left(\frac{29}{54} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{31}{27}} \right)^{1/3} + \left(\frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{31}{27}} \right)^{1/3} \\ \eta_2 &= \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{31}{27}} \right)^{1/3} + \left(\frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{31}{27}} \right)^{1/3} \\ \eta_3 &= 1 \end{aligned} \quad (3-32)$$

我们也曾试图找到这种结构的投影面，以得到其傅里叶谱的解析表达式。但是没有成功。理论上投影面是应该存在的，但是比较复杂，可能不是一个简单的二维图形。因此只能得到每个倒格矢的位置，而不能解析的给出每个傅里叶系数的大小。用相同的 η_1 、 η_2 、 η_3 ，并用我们选定的投影面，我们得到了另一个准周期序列： $ABCAACBACABACACBAACBAC\dots$ 。我们分别用数值的方法计算了这两种结构的傅里叶谱（见图3-5a, b）。可以看出尽管这两种结构在实空间上完全不同，

但它们有相同的倒格矢，只是倒格矢的大小有所不同。在这两个结构中，每一种组元的个数都是相同的，也就是 η_1 、 η_2 、 η_3 值是相同的。不同的只是这些组元的排布。而不同的结构或者相同的结构不同的结构参数都将导致傅里叶系数大小的不同，这在产生高效率的激光变频输出方面是很有用的。

对于第二个准周期结构，我们找不到合适的迭代公式，或者说这个结构的迭代公式很复杂，不能简单的表示。实际上能用简单的迭代公式表示的准周期结构是很少的，例如 Fibonacci 序列。而大部分由投影方法得到的结构是找不到合适的迭代公式的。

图 3-5c 是利用公式 (3-26) 和 (3-27) 得到的。我们与数值计算的结果 (图 3-5b) 进行了仔细的比较，包括每个倒格矢的位置及其大小。两者重合的很好，这也就证明了公式 (3-37) 和 (3-28) 的正确性。唯一的不同在于：由于数值计算是有限长度的 (我们取了 200 块)，因此每个峰都有展宽。而解析得到的谱是由大量的 Delta 函数构成的，不存在展宽问题。



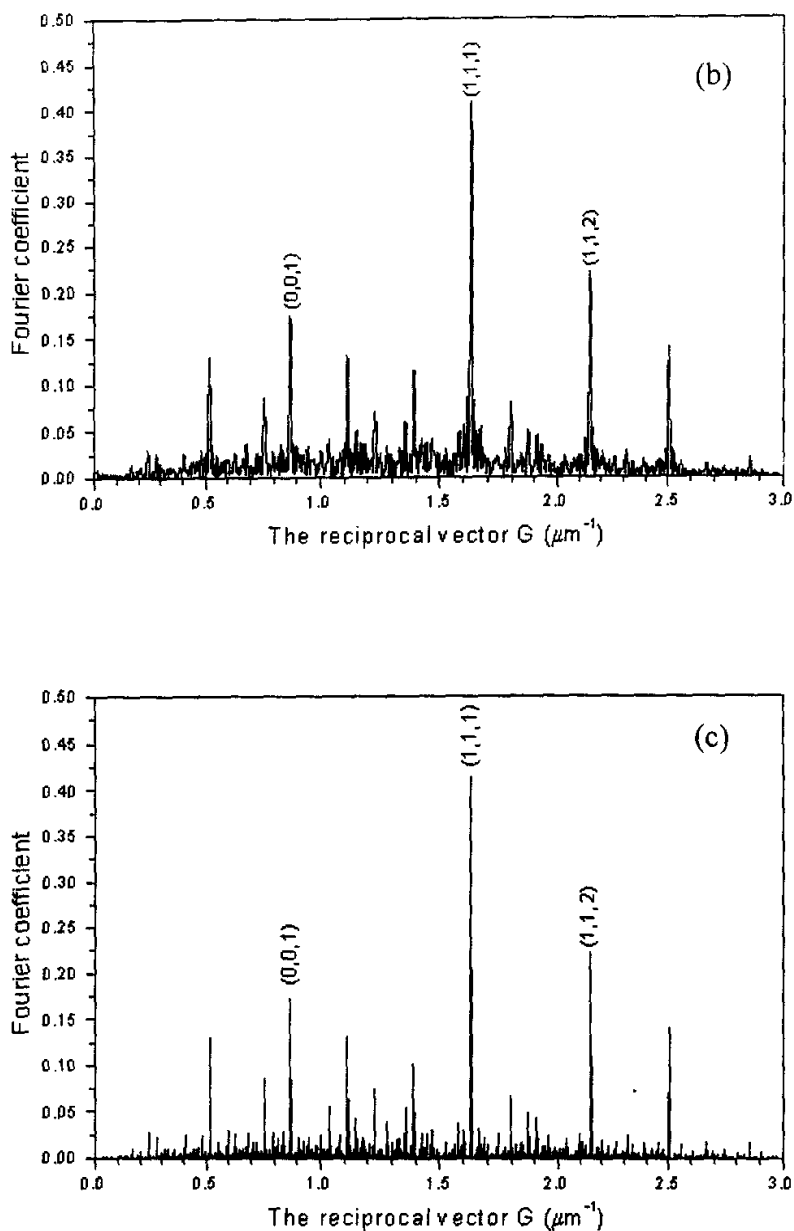


图 2-4 三组元结构的傅里叶谱。其结构参数为: $D=28.564 \mu\text{m}$, $D_A=3.0 \mu\text{m}$, $D_B=4.0 \mu\text{m}$, $D_C=5.0 \mu\text{m}$, $l_c=2.0 \mu\text{m}$ 。(a)由迭代公式生成的结构的数值结算结果。一共计算了 200 块;(b)由投影法生成的结构的数值计算结果;(c)由我们得到的解析公式得到的结果。

考虑到三组元准周期结构是由二组元准周期结构延伸而来的,或者说二组元结构是三组元结构的特例,因此我们得到的结果应该也同样适用于二组元结构。我们只要设 $D_B=0$, 公式(3-37)就可以简化为

$$g_{m,n} = 2(1+\tau)D^{-1} \operatorname{sinc}\left(\frac{G_{m,n}l}{2}\right) \operatorname{sinc}(X_{m,n}) \delta[G_{m,n} - 2\pi D^{-1}(n\tau + m)] \quad (3-33)$$

与公式(3-12)完全相同。

同样,当 $D_A=D_B=D_C$ 时,退化为周期结构,公式(3-37)进一步简化为:

$$g_m = \frac{2}{m\pi} \operatorname{sinc}\left(\pi m \frac{l_c}{D}\right) \delta(G_m - 2\pi D^{-1}m) \quad (3-34)$$

比较这三种不同的结构:三组元准周期,二组元准周期和周期结构,三组元结构的傅里叶谱是最复杂的,而且还包含有两个自由变量。要实现光参量过程,周期结构是最简单也是最受限制的。它仅能实现一个光参量过程,例如 SHG 和 SFG。二组元结构是周期结构的扩展。其傅里叶谱的倒格矢是 $G_{m,n} = 2\pi D^{-1}(n\tau + m)$, 参数 τ 是自由变量。选定某个 τ , 可以选择两个倒格矢来同时补偿两个位相失配。这使得同时实现两个光参量过程(例如 QPM 的多波长 SHG 和直接 THG)成为可能。三组元结构是进一步的扩展。其倒格矢的位置可以表示成: $G_{m,n,l} = 2\pi D^{-1}(m\eta_1 + n\eta_2 + l)$, 参数 η_1, η_2 都是自由变量。这使得三组元准周期在结构设计上比二组元准周期有更高的灵活性。而且,还能同时提供三个倒格矢来同时补偿三个位相失配,实现大于两个的光参量过程(例如五倍频输出)。

§3、3 在三组元准周期结构中实现直接的五倍频输出

五次谐波的产生要通过三个光参量过程： $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ ， $2\omega + 2\omega \rightarrow 4\omega$ 和 $\omega + 4\omega \rightarrow 5\omega$ 。

根据 QPM 理论：

$$\begin{aligned} G_{m_1, n_1, l_1} &= \Delta k_1 \\ G_{m_2, n_2, l_2} &= \Delta k_2 \\ G_{m_3, n_3, l_3} &= \Delta k_3 \end{aligned} \quad (3-35)$$

联立公式(3-24)，得

$$\begin{aligned} 2\pi \frac{m_1 \eta_1 + n_1 \eta_2 + l_1}{D} &= \frac{4\pi(n_{2\omega} - n_\omega)}{\lambda} \\ 2\pi \frac{m_2 \eta_1 + n_2 \eta_2 + l_2}{D} &= \frac{8\pi(n_{4\omega} - n_{2\omega})}{\lambda} \\ 2\pi \frac{m_3 \eta_1 + n_3 \eta_2 + l_3}{D} &= \frac{2\pi(5n_{5\omega} - 4n_{4\omega} - n_\omega)}{\lambda} \end{aligned}$$

同样选择 LT 为工作物质，设定基波的波长为 2000nm，工作温度为 100°C。三个过程的波矢失配分别为： $0.2078 \mu\text{m}^{-1}$ ， $0.9874 \mu\text{m}^{-1}$ 和 $1.434 \mu\text{m}^{-1}$ 。选择 $G_{0,1,1}$ 匹配 $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ 过程； $G_{2,3,3}$ 匹配 $2\omega + 2\omega \rightarrow 4\omega$ 过程； $G_{4,5,6}$ 匹配 $\omega + 4\omega \rightarrow 5\omega$ 过程。结构参数 $D = 110.6 \mu\text{m}$ ， $\eta_1 = 3.204$ ， $\eta_2 = 2.658$ ， $D_A = 13.0 \mu\text{m}$ ， $D_B = 17.9 \mu\text{m}$ ， $D_C = 21.38 \mu\text{m}$ ， $l_c = 10.7 \mu\text{m}$ 。同样根据波动耦合方程，得到基波光、倍频光和四倍频光和五倍频光转换效率随样品长度的变化关系，见图 3-6。可以看出理论上五倍频的转换效率可达到 50%。

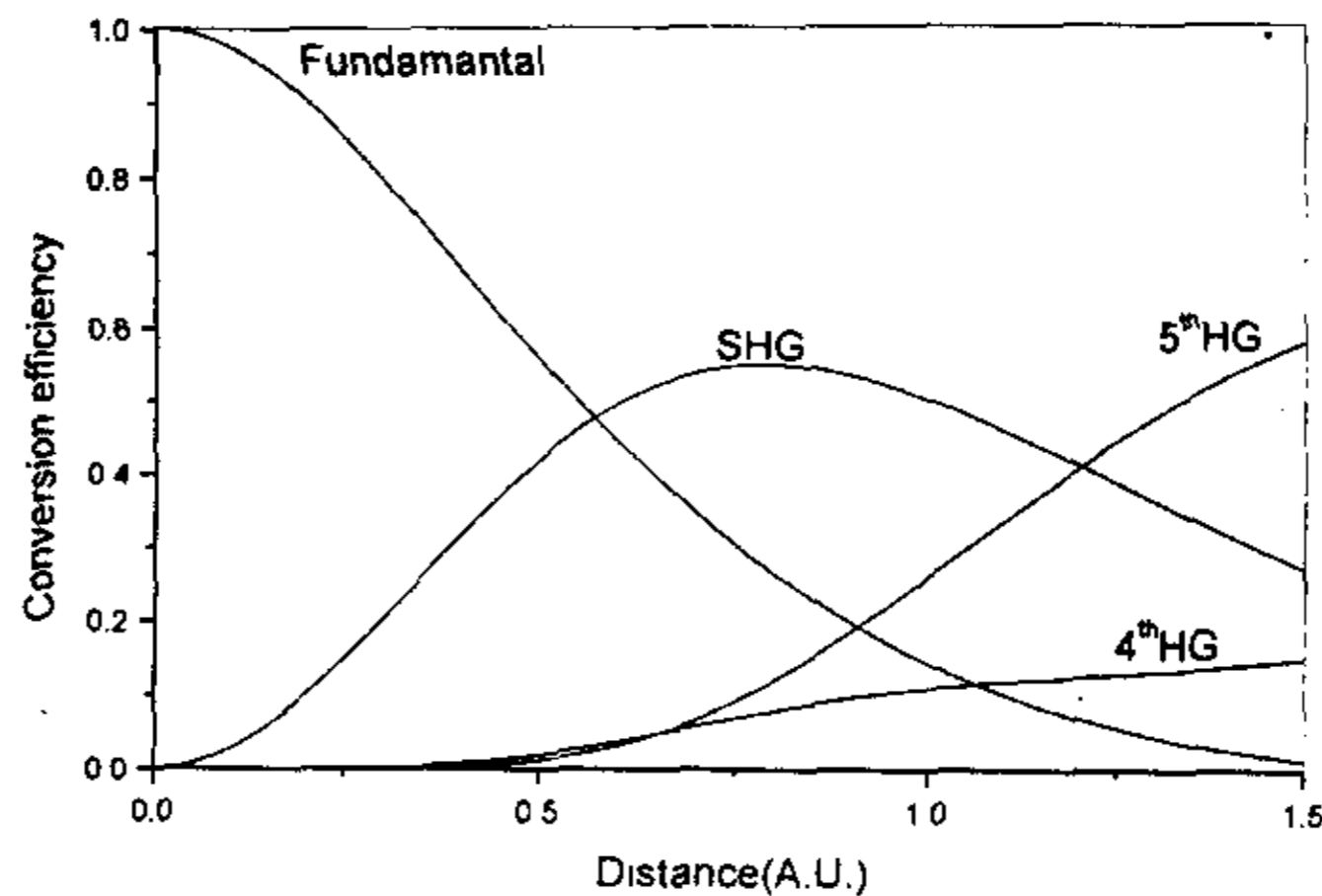


图3-6 基波、倍频、四倍频和五倍频转换功率随样品长度的变化关系。

【参考文献】

1. P.J.Steinhardt and S.Ostlund, *The Physics of Quasicrystals* (Singapore, World Science, Singapore, 1987); Janot C, *Quasicrystals*, (Oxford, UK, Clarendon Press, 1992)
2. J.A.Armstrong; N.Bloembergen; J.Ducuing; and P.S.Pershan, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962)
3. S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, Y.Q.Qin, H.F.Wang, C.Z.Ge and N.B.Ming, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2752 (1997).
4. S.N.Zhu, Y.Y.Zhu, and N.B.Ming, *Science.* **278**, 843 (1997)
5. R.K.P.Zia and W.J.Dallas, *J. Phys. A.* **18**, L341 (1985)
6. A.Hu, Z.X.Wen, S.S.Jiang, W.T.Tong, R.W.Peng, and D.Feng, *Phys. Rev. B* **48**, 829 (1993)
7. 田强硕士论文, 1985年。

第四章 周期超晶格结构中的五倍频输出

要在超晶格结构中实现耦合的光参量过程，例如三倍频，必须满足 QPM 条件，即必须由该结构提供两个或两个以上的倒格矢来分别补偿多个光参量过程中的位相失配。准周期结构由于其灵活丰富的构成形式，能够很好的满足这个要求。通常总能够通过结构的设计，提供恰当的倒格矢来实现激光的多次谐波过程。与此相比，周期结构作为一种单一的结构，其倒格矢是固定的，是 $2\pi/D$ 的整数倍。一般情况下，它只能提供一个倒格矢，来实现一个光参量过程，如二倍频。然而，特殊的情况总是存在的。对于某些特殊的非线性材料，如果对于某个特定的波长的基波，其他光参量过程的位相失配都是 SHG 过程的整数倍时，耦合的光参量过程也可以在周期结构中产生。考虑到周期结构简单的制备工艺，我们认为在周期结构中实现激光的多次变频还是很有实际意义的。

§4.1 理论解释

要在周期结构中实现激光变频，必须满足 QPM 条件：

$$\Delta k = G_m = m \frac{2\pi}{D} \quad (D \text{ 为周期的单元长度}) \quad (4-1)$$

Δk 为光参量过程中产生的位相失配， G_m 为周期结构能够提供的倒格矢。我们可以利用一阶倒格矢 G_1 ，并调整结构参数 D ，就可以匹配倍频过程中产生的位相失配 Δk_{SHG} ，实现二次谐波的输出。

要在系统中同时实现更多的光参量过程就必须由周期结构提供更多的倒格矢。由于周期结构的倒格矢都为 $2\pi/D$ 的整数倍，这就要求其他光参量过程中产生的位相失配也必须是 $2\pi/D$ 的整数倍(见 4-1)。

一个简单的例子是在 LT 中实现以 1342nm 为基波的蓝光三倍频。其中 SFG 的位相失配恰好是 SHG 的三倍，因此可以分别用 G_1 和 G_3 来补偿，从而实现了 447nm 的蓝光三倍频和 671nm 的红光二倍频的同时输出。

现考虑一个更复杂的情况：SHG、THG、4thHG 和 5thHG 的同时输出。这就要求 THG、4thHG 和 5thHG 过程中所产生的位相失配都为 SHG 中的位相失配的整数倍。只有这样才能在周期结构中找到合适的倒格矢进行补偿。

这四个光参量过程的位相失配可以写为：

$$\begin{aligned}
 \Delta k_{SHG} &= \frac{4\pi(n_{2\omega} - n_{\omega})}{\lambda} \\
 \Delta k_{THG} &= \frac{2\pi(3n_{3\omega} - 2n_{2\omega} - n_{\omega})}{\lambda} \\
 \Delta k_{4^{th}HG} &= \frac{8\pi(n_{4\omega} - n_{2\omega})}{\lambda} \\
 \Delta k_{5^{th}HG} &= \frac{2\pi(5n_{5\omega} - 3n_{3\omega} - 2n_{2\omega})}{\lambda} \\
 \Delta k'_{5^{th}HG} &= \frac{2\pi(5n_{5\omega} - 4n_{4\omega} - n_{\omega})}{\lambda}
 \end{aligned} \tag{4-2}$$

其中五倍频可以由两种方式产生：一是二倍频和三倍频的和频，二是基波和四倍频的和频。设定工作温度为室温(25°C)，并利用 Sellmeier 折射率公式计算得，当 $\lambda = 1.960 \mu m$ 时，

$$\begin{aligned}
 \Delta k_{SHG} &= 0.211 \mu m^{-1}; \\
 \Delta k_{THG} &= 0.421 \mu m^{-1} & \Delta k_{THG} / \Delta k_{SHG} &= 2 \\
 \Delta k_{4^{th}HG} &= 1.035 \mu m^{-1} & \Delta k_{4^{th}HG} / \Delta k_{SHG} &\approx 5 \\
 \Delta k_{5^{th}HG} &= 2.125 \mu m^{-1} & \Delta k_{5^{th}HG} / \Delta k_{SHG} &= 10 \\
 \Delta k'_{5^{th}HG} &= 1.511 \mu m^{-1}
 \end{aligned}$$

因此我们可以用 G_1 匹配倍频， G_2 匹配三倍频， G_5 匹配四倍频， G_{10} 匹配五倍频。

再根据 $\frac{2\pi}{D} = \Delta k_{SHG}$ 计算得： $D = 29.842 \mu m$ 。从上面的计算还可以看出

$\Delta k'_{5^{th}HG} / \Delta k_{SHG}$ 不为整数，这说明五次谐波是由二次谐波和三次谐波和频而成，而非由基波和四次谐波和频。

§4、2 实验验证

在实验中我们用室温极化的方法在 LT 晶体上制备出了这个超晶格结构，并用一个钕铝石榴石脉冲激光器 (Nd-YAG, NY81-10, Continuum, Santa Clara, California) 泵浦的光参量放大器 (OPO) 作为光源，其输出半宽度为 0.7 nm ，脉宽为 8 ns ，重复频率为 10 Hz 。基波光束和谐波光束从 LT 晶体的 x 方向入射，其偏振方向为晶体的 Z 方向。输出的光的波长由一台三光栅光谱仪 (SpectroPro-750, Acton Research Cooperation) 进行标定。最后我们观测到了 982 nm 的二倍频、 648 nm 的三倍频、

491nm 的四倍频和 394nm 的五倍频输出。图 4-1、图 4-2、图 4-3 分别为用光谱仪观测到的二倍频、四倍频和五倍频的频谱。

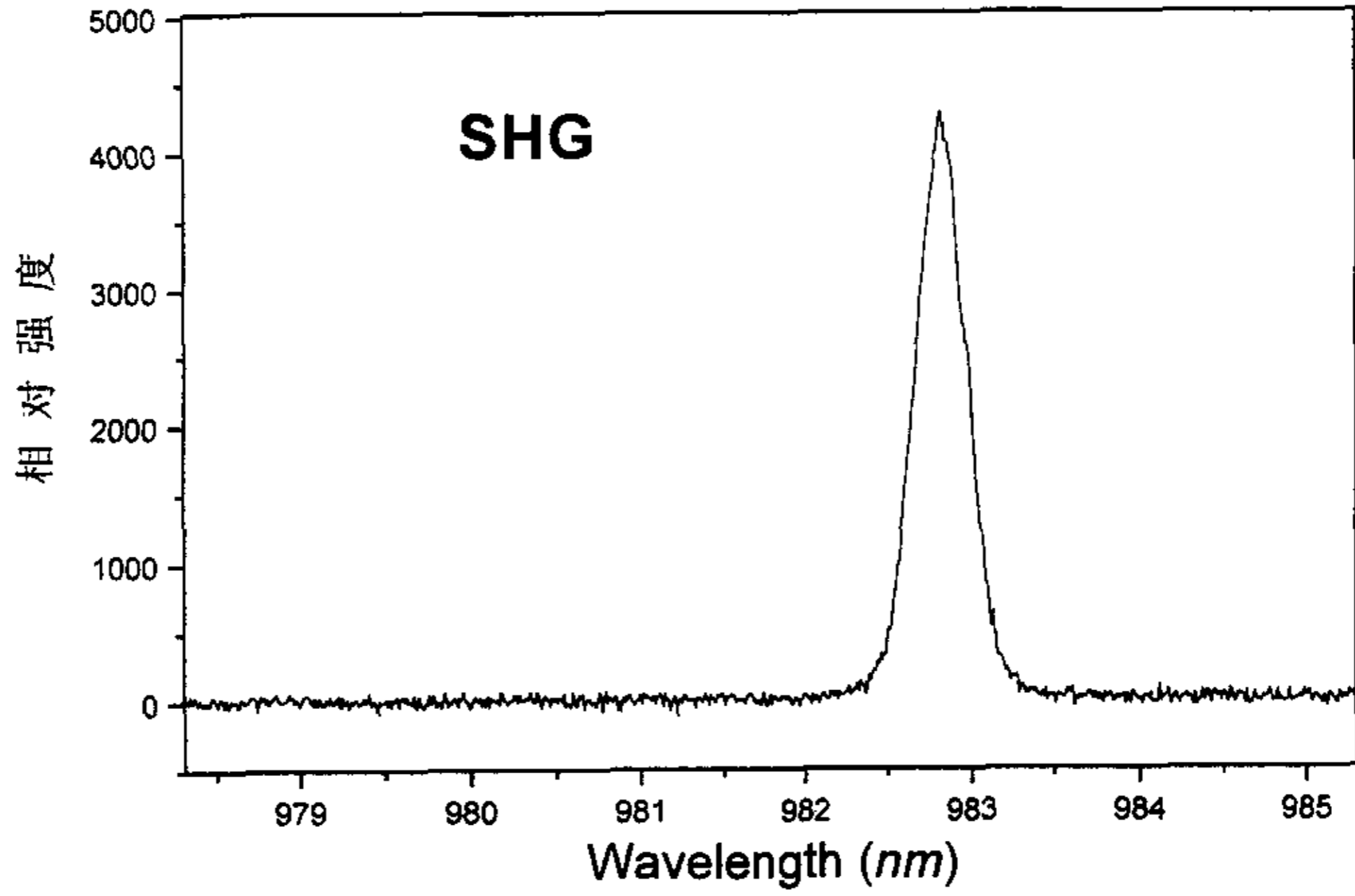


图 4-1 二倍频频谱

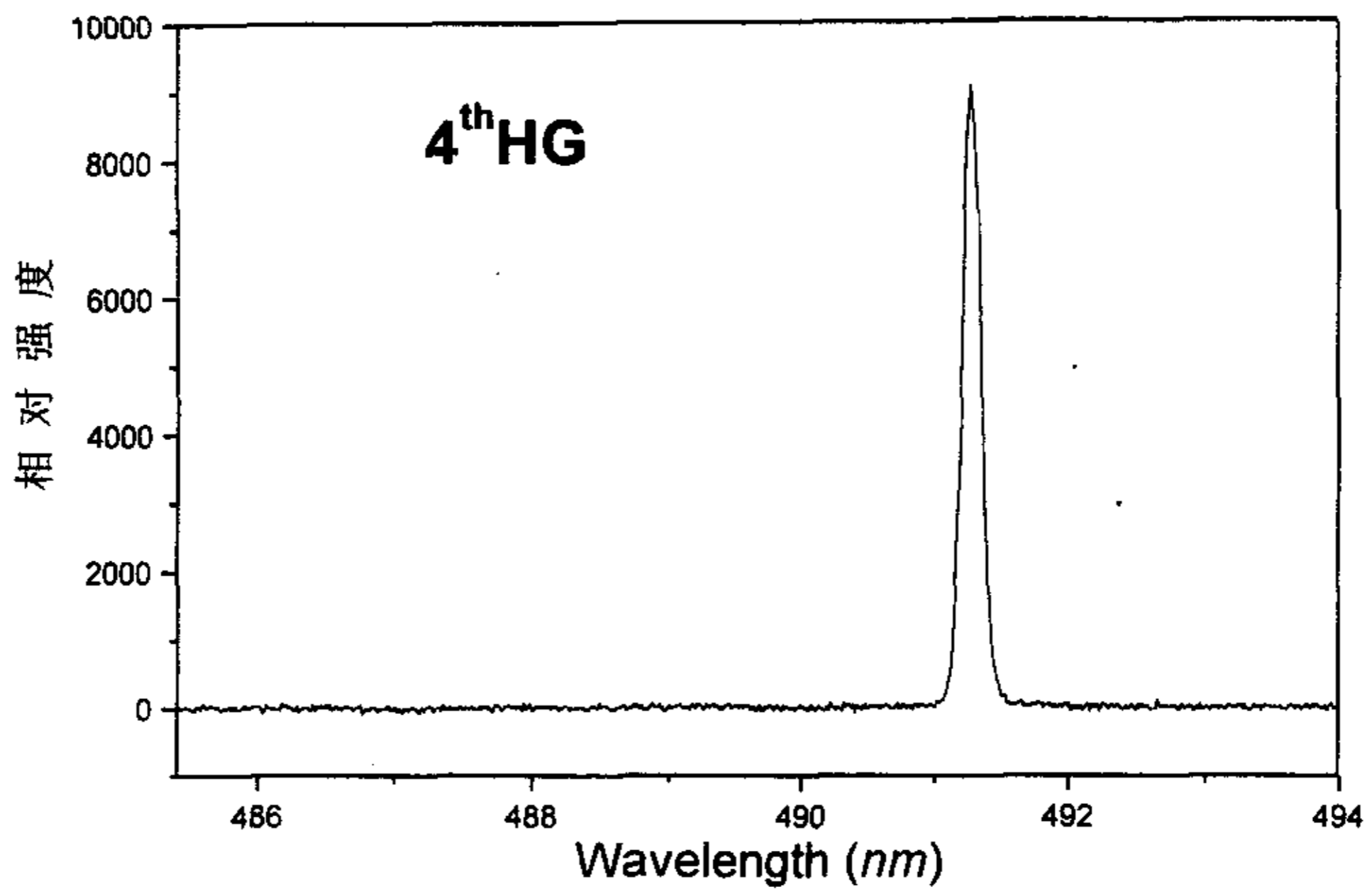


图 4-2 四倍频频谱

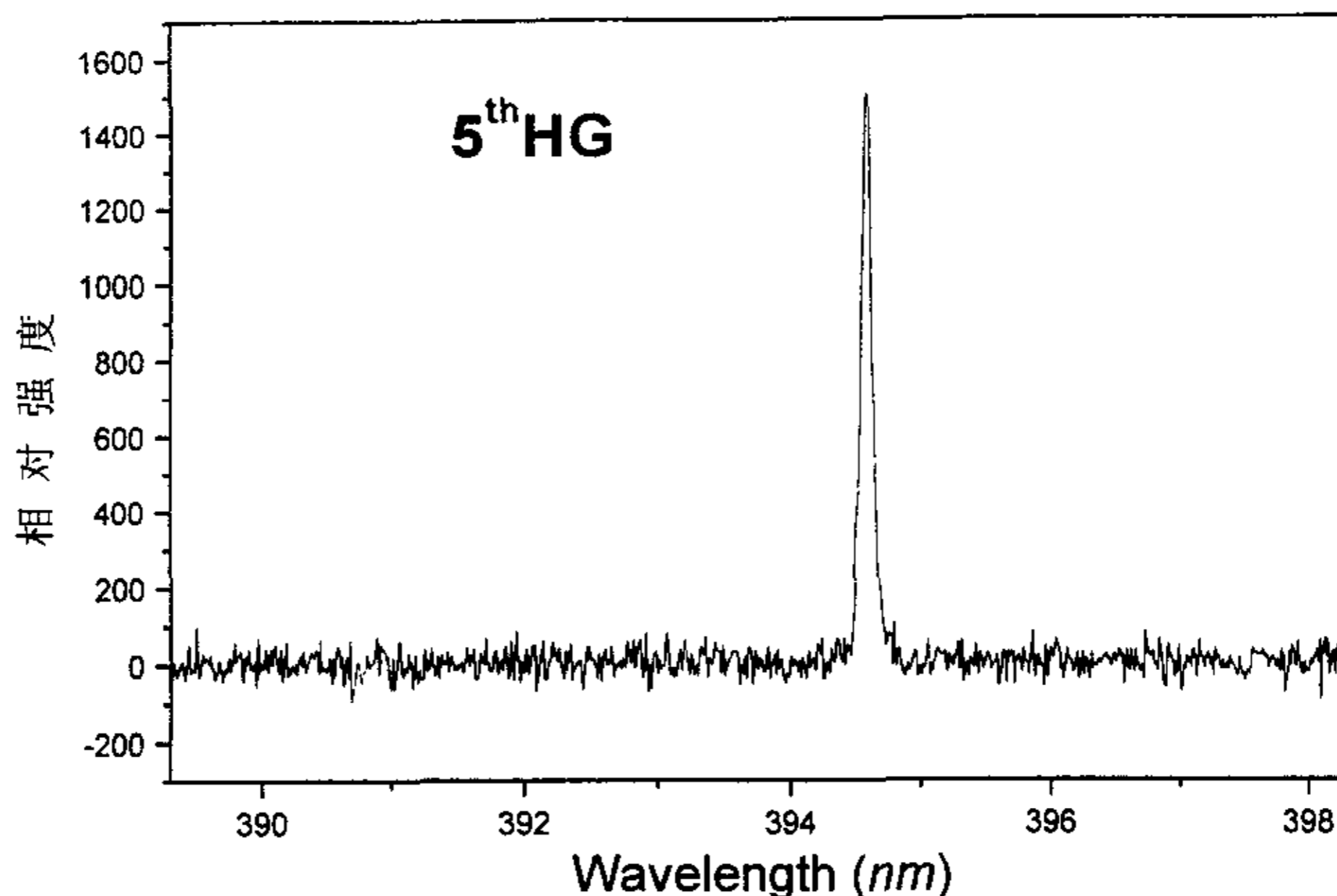


图 4-3 五倍频频谱

由于同时输出的光波多而且频率的范围很大，我们在实验中找不到合适的滤波片来将这些不同频率的光一一分出；利用三棱镜分光又遇到不同频率在棱镜中吸收不同的问题，因此我们没有得到各次谐波的具体效率及其温度带宽。但估计其四倍频的效率在 1%~8% 之间，五倍频的效率在 0.1% 左右。这是我们首次观测到 SHG、THG、4thHG 和 5thHG 的同时输出。

从图 4-1 到图 4-3 还可以看出波长带宽的变化。我们已知基波的带宽 $\Delta\lambda_{FW} = 0.7\text{nm}$ ，从图中可读得： $\Delta\lambda_{SHG} = 0.35\text{nm}$ ； $\Delta\lambda_{4^{th}HG} = 0.15\text{nm}$ ； $\Delta\lambda_{5^{th}HG} = 0.09\text{nm}$ 。因此可以说，随着频率的提高，波长的带宽 $\Delta\lambda$ 在逐渐变小。如果小信号近似适用，当入射的基波为平面波时，二次谐波的功率正比于基波功率的平方，因此其带宽应与基波在 $1/\sqrt{2}$ 点处的带宽相同，小于基波在 1/2 点处的带宽。四次谐波的带宽与二次谐波的关系和二次谐波与基波间的关系相同。三次谐波是由基波与二次谐波和频产生，其带宽应小于二次谐波。而五次谐波是由二次谐波和三次谐波和频而成，带宽应该更小。实验结果与上述理论分析的基本趋势一致，即频率越高，波长越短，带宽就越小。由于实验中入射的基波并非平面波，因此实际测得的各次谐波的带宽在定量上与上述理论分析的结果有差别。

【参考文献】

1. 祝世宁博士论文，周期、准周期 LiTaO_3 超晶格设计制备及激光变频效应的研究（1996）
2. G.Z.Luo, S.N.Zhu, J.L.He, Y.Y.Zhu, et.al, Appl. Phy. Lett. 78, 3008 (2001)

第五章 结 论

本文从准周期结构的基本特性入手,详细研究了 LT 超晶格的二级非线性效应。其中包括二组元 LT 超晶格中的任意波长的三次谐波的产生以及三组元超晶格中任意波长的五次谐波的产生。既有理论上的探讨,也有实验结果的分析。通过上述研究,我们可以得出如下结论:

- 1、二组元的准周期结构是一类结构的总称。其具体结构取决于在二维空间中的投影角。当投影角为 $\theta = \arctan \frac{1+\sqrt{5}}{2}$ 时,产生的就是著名的 Fibonacci 序列。不同的投影角产生不同的准周期结构,也就可以提供不同的倒格矢来匹配变频过程中不同的位相失配。这为实现任意波长的三次谐波输出提供了条件。
- 2、投影角的大小决定了准周期的结构,也决定了其傅里叶谱的峰值的位置,即倒格矢的位置。而决定倒格矢大小,即傅里叶系数的是具体的结构参数:结构单元和单元中正负畴的长度。因此在准周期结构确定下来以后,调节具体的结构参数可以得到最大的输出效率。
- 3、结构设计中用到的 LT 的折射率公式对最后实验得到的结果的影响是很敏感的。材料折射率的任何细小的偏差都会破坏 QPM 条件,导致位相失配,使得倍频和三倍频的最高峰不重合,降低了转换效率。而在极化过程中产生的结构参数的偏差对最后的结果的影响不大。
- 4、由于准周期结构存在着丰富的倒格矢,可在多个频率满足 QPM 条件,因而随着基波光波长的变化,可以用一块晶体可获得从蓝光到红外光的多色倍频,以及三倍频。
- 5、根据投影理论,首次得到了三组元准周期结构的傅里叶谱的解析表达式,明确了其倒格矢的位置、傅里叶系数和投影角、结构参数之间的关系。通过比较发现,可以利用迭代公式得到的三组元准周期结构是十分有限的。大部分由投影得到的三组元准周期结构无法找到一个简单的迭代公式来表示,其具体结构只能通过数值计算得到。
- 6、由于在决定三组元结构的倒格矢位置的公式中有两个变量(比二组元结构多一个),三组元准周期在结构设计上比二组元准周期有更高的灵活性,而且,还能同时提供三个倒格矢来同时补偿三个位相失配,实现大于两个的光参量过程

(例如五次谐波)。

- 7、一般的准周期结构，不论是由二组元、三组元或是由更多的组元构成，其傅里叶谱理论上都可以用一个通用的公式来表达。但随着构成组元的增加，公式的复杂程度将大大增加。例如要研究四组元的结构就将涉及到三维的空间积分，推导的难度很大。而且通过对实现对基波的五次变频已经能够满足从红外到深紫外 (UV) 的波长范围的输出，因此研究四组元结构的实际意义也不大。
- 8、作为一种简单结构，周期结构的倒格矢是固定的，一般只能实现一个光参量过程。但对于某些特殊的非线性材料，如果对于某个特定的波长的基波，其他光参量过程的位相失配都是 SHG 过程的整数倍时，耦合的光参量过程也可以在周期结构中产生。

致 谢

在论文结束之际，谨向所有关心和帮助我顺利完成学业的人表示由衷的感谢。

首先要衷心的感谢朱永元教授。感谢一年多来朱老师的帮助、关心和具体指导。朱老师为人随和，他的课题组学术氛围宽松，学生处于其间得以有足够的自由发展的空间。

衷心的感谢祝世宁教授，祝老师对实验现象敏锐的观察力，对实验工作细致的，一丝不苟的作风使我收益非浅。他的宽厚人品和耐心教诲也使我终身难忘。

还要感谢王惠田教授的耐心教导，感谢雷新亚、陈延峰、陆延青、李爱东、吴军、吕鹏等老师们从各个方面给我的帮助。感谢系里的焦洪震、袁玲老师对我的关怀和照顾。

感谢本实验室的张超、刘照伟、陈延彬、奚元新、张学进、罗国珍、杜燕、王飞等诸位同学在工作和生活上的合作和帮助。

最后我要感谢我的家人。多年来，我的母亲，兄长一直在默默的鼓励和支持着我，没有他们，我不可能顺利的完成学业。谨将此文献给他们。

本工作得到国家基础重大项目“973”，国家高科技发展项目“863”和国家自然科学基金的资助。

攻读硕士期间发表和即将发表的文章：

1. "Three-component Quasiperiodic Superlattice and its Fourier Spectrum"
H.Wei, C.Zhang, Y.Y.Zhu, S.N.Zhu and N.B.Ming
Ferroelectrics (in press)
2. "Third-Harmonic Generation in a general two-component quasi-periodic optical superlattice"
C.Zhang, **H.We**i, Y.Y.Zhu, H.T.Wang, S.N.Zhu and N.B.Ming
Optics Letters (in press)
3. "Analytical Expression for a Quasiperiodic Superlattice with K Components ($K \leq 3$)"
H.Wei, C.Zhang, Y.Y.Zhu, S.N.Zhu and N.B.Ming
Physica Status Solidi A, Submitted