中国激光
第14卷 第7期

旋光晶体中的SHG及其相位匹配

陈书潮 黄容长
(厦门大学物理系)

提要：本文用两种不同方法推导出了旋光晶体的SHG(二次谐波)的输出强度之数学解析表达式，讨论了其相位匹配的可能性。

SHG and phase matching in rotatory crystals

Chen Shuchao, Huang Rongchang
(Departmrnt of Physics, Xiamen University, Xiamen)

Abstract: Using two different methods an analytical expression of output intensity of SHG for rotatory crystal has been deduced and the possibility of its phase matching is discussed.

一、引 言

非线性晶体的SHG早就得到了广泛和深入的研究，并得到了很大的成功。但是，至今所用的晶体都是非旋光性的。而对于旋光晶体来说，由于它们的复杂情况，很少人对它进行深入研究。Rabin和Bey[1]曾对旋光晶体的SHG做了理论估算。稍后，Simon和Bloembergen[2]对这方面做了些实验。下面我们用两种方法推导出旋光晶体中的SHG的输出强度解析表达式，并讨论其相位匹配的可能性。

二、旋光晶体的倍频光输出强度

应用电磁学的基本公式，并考虑非线性相互作用，可以推出如下结果[3]：

$$(E^{2\omega})^2=\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2(E_0^\omega)^4L^2\frac{\sin^2\dfrac{\Delta K\cdot L}{2}}{(\Delta K\cdot L/2)^2} \tag{1}$$

此处$E^{2\omega}$和E_0^ω分别是倍频光和入射光的电场强度，$\overleftrightarrow{d}$是非线性二阶张量，L是晶体长度。但是这只适于非旋光晶体，对于旋光晶体，我们必须考虑到入射光和倍频光的偏振矢在晶体中的旋转。假定入射光的波矢量沿着z轴(即晶体$\boldsymbol{c}$轴)方向，按照Fresnel的旋光假定，我们有：

$$\psi=\frac{2\pi}{\lambda}(n_R-n_L)z \tag{2}$$

此处ψ是光在旋光晶体中偏振矢旋转过的角度，z是光在晶体中传播距离，n_R及n_L分别为晶体对σ^-及σ^+圆偏振光的折射系数。由于n_R及n_L与频率有关，故倍频光与入射光

收稿日期：1985年7月25日；修改稿收到日期：1986年7月3日。

的偏振矢的旋转速率也将不同，它们之间的夹角为(传播单位长度后)：

$$\Delta\psi=\psi^{2\omega}-2\psi^{\omega}$$
$$=\frac{2\pi}{\lambda}[(n_R^{2\omega}-n_L^{2\omega})-(n_R^{\omega}-n_L^{\omega})] \quad (3)$$

于是，倍频光的 χ 分量可表为*：

$$\left[\frac{dE_x^{2\omega}}{dz}\right]_R=-\frac{1}{2}i\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\overleftrightarrow{d}(E_0^{\omega})^2e^{i\Delta k\cdot z}$$
$$\times(e^{i\Delta\psi z}+e^{-i\Delta\psi z}) \quad (4)$$

此处 $\Delta K=K^{2\omega}-2K^{\omega}$。对于低转换效率而言，在整个晶体中，入射光强的变化可以忽略。这样，对整个晶体长度积分后得(以下均为旋光结果，脚标 R 从略)：

$$E_x^{2\omega}=-\frac{i}{2}\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\overleftrightarrow{d}(E_0^{\omega})^2$$
$$\times\left[\frac{e^{i(\Delta k+\Delta\psi)L}-1}{i(\Delta k+\Delta\psi)L}+\frac{e^{i(\Delta k-\Delta\psi)L}-1}{i(\Delta k-\Delta\psi)L}\right] \quad (5)$$

从而得到：

$$E_x^{2\omega}\cdot(E_x^{2\omega})^*=\frac{1}{4}\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2(E_0^{\omega})^4$$
$$\times L^2(S_1+S_2+\Omega) \quad (6)$$

此处：

$$S_1=\frac{\sin^2[(\Delta k+\Delta\psi)L/2]}{[(\Delta k+\Delta\psi)L/2]^2},$$
$$S_2=\frac{\sin^2[(\Delta k-\Delta\psi)L/2]}{[(\Delta k-\Delta\psi)L/2]^2} \quad (7)$$
$$\Omega=\frac{\begin{Bmatrix}2\sin[(\Delta k+\Delta\psi)L/2]\\ \cdot\sin[(\Delta k-\Delta\psi)L/2]\end{Bmatrix}}{\begin{Bmatrix}[(\Delta k+\Delta\psi)L/2]\\ \cdot[(\Delta k-\Delta\psi)L/2]\end{Bmatrix}}\cdot\cos(\Delta\psi\cdot L) \quad (8)$$

同理，我们得到：

$$E_y^{2\omega}(E_y^{2\omega})^*=\frac{1}{4}\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2$$
$$\times(E_0^{\omega})^4L^2(s_1+s_2-\Omega) \quad (9)$$

从(6)和(9)我们得到：

$$(E^{2\omega})^2=\frac{1}{2}\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2$$
$$\times(E_0^{\omega})^4\cdot L^2(S_1+S_2) \quad (10)$$

或者说，倍频光输出强度为：

$$I=\frac{1}{4}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2$$
$$\times(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2) \quad (11)$$

三、相位匹配的分析

为了更清楚地了解(10)或(11)式的物理意义，我们进行如下的简单讨论。

1，$\Delta\psi=0$，或者说 $n_R=n_L$，即非旋光晶体情况，从(10)我们得到：

$$(E^{2\omega})^2=\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2L^2(E_0^{\omega})^4$$
$$\times\sin^2(\Delta k\cdot L/2)/(\Delta k\cdot L/2)^2,$$

与 Yariv[3] 的非旋光晶体结果完全一致。

2．$\Delta\psi\neq0$ 或 $n_R\neq n_L$，就是旋光晶体。由于 $\Delta k+\Delta\psi=0$ 及 $\Delta k-\Delta\psi=0$ 不可能同时满足，S_1 及 S_2 就不可能同时达到最大值，就是说，要达到完全的相位匹配是不可能的。

3．半相位匹配：如果旋光晶体具有双折射，我们可以创造些条件使得 $\Delta k+\Delta\psi=0$ 或 $\Delta k-\Delta\psi=0$ 之一得到满足，就是说：

$$(n^{2\omega}-n^{\omega})+[(n_R^{2\omega}-n_R^{\omega})-(n_L^{2\omega}-n_L^{\omega})]=0 \quad (12)$$

或

$$(n^{2\omega}-n^{\omega})-[(n_R^{2\omega}-n_R^{\omega})-(n_L^{2\omega}-n_L^{\omega})]=0 \quad (13)$$

顾及到 $S_1>0$，$S_2>0$，且当 $S_2=1$ 时，则 $S_1\ll1$，而 $S_1=1$ 时，则 $S_2\ll1$。于是，我们可以看到一个很有趣的结果，不论是(12)或(13)式得到满足，都可得到：

$$(E^{2\omega})^2=\frac{1}{2}\frac{\mu_0}{\varepsilon}\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2(E_0^{\omega})^4L^2 \quad (14)$$

---

* 由于晶体的旋光性，在波的传播方向 z 上，不同位置产生的倍频光偏振方向的差别为．

$$\Delta\psi\cdot z=(\psi^{2\omega}-2\psi^{\omega})\cdot z。$$

于是可把在 z 到 $(z+dz)$ 处产生的场的变化写为：

$$\left[\frac{dE_x^{2\omega}}{dz}\right]_R=\frac{dE_x^{2\omega}}{dz}\cdot\cos(\Delta\psi\cdot z)$$

及 $$\left[\frac{dE_y^{2\omega}}{dz}\right]_R=\frac{dE_y^{2\omega}}{dz}\cdot\sin(\Delta\psi\cdot z)。$$

而 $$\frac{dE_x^{2\omega}}{dz}=-i\omega\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}(\overleftrightarrow{d})(E_0^{\omega})^2\cdot e^{i\Delta k\cdot z[4]}。$$

再考虑到：

$$\cos\theta=\frac{(e^{i\theta}+e^{-i\theta})}{2},$$

则可得到(4)。

或

$$I^{2\omega}=\frac{1}{4}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\,\omega^2(\overleftrightarrow{d})^2(E_0^{\omega})^4L^2 \quad (15)$$

把(14)式与(1)式比较一下，显然只差0.5的系数，这说明旋光晶体可以做为SHG的材料，并且可以得到我们称之为半相位匹配，只要(12)式或(13)式的条件得到满足。

4．对于旋光率很弱的旋光晶体，即 $\Delta k\gg\Delta\psi$，或

$$(n^{2\omega}-n^{\omega})\gg[(n_R^{2\omega}-n_R^{\omega})-(n_L^{2\omega}-n_L^{\omega})],$$

这样的晶体可以得到近于非旋光晶体的相位匹配。

四、极化矢量计算

在外场作用下，二阶极化矢量分量与外场关系可表为[3]：

$$\begin{pmatrix}P_x\\P_y\\P_z\end{pmatrix}=\begin{pmatrix}d_{11}&d_{12}&d_{13}&d_{14}&d_{15}&d_{16}\\d_{21}&d_{22}&d_{23}&d_{24}&d_{25}&d_{26}\\d_{31}&d_{32}&d_{33}&d_{34}&d_{35}&d_{36}\end{pmatrix}\times\begin{pmatrix}E_x^2\\E_y^2\\E_z^2\\2E_zE_y\\2E_zE_x\\2E_xE_y\end{pmatrix} \quad (16)$$

如果入射光的线偏振矢 $\boldsymbol{k}$ 沿着 $\boldsymbol{z}$ 方向($\boldsymbol{c}$ 轴)，则其电矢量可写为 $\boldsymbol{E}^{\omega}=\boldsymbol{E}_0^{\omega}e^{i(\omega t-k\cdot z)}$，再考虑到晶体的旋光性，那么入射光电矢量分量可表为：

$$\begin{cases}E_x^{\omega}=E_0^{\omega}e^{i\tau}\cos(\psi^{\omega}\cdot z)\\E_y^{\omega}=E_0^{\omega}e^{i\tau}\sin(\psi^{\omega}\cdot z)\\E_z=0\end{cases} \quad (17)$$

此处 $\tau=(\omega t-k\cdot z)$，应用(16)和(17)，我们可以得到各种不同对称晶体的二阶非线性极化矢的数学解析表示。下面我们给出一些例子以便和(10)或(1)比较。

1) $\bar{6}m2$ 对称晶体：

$$\overleftrightarrow{d}=\begin{pmatrix}0&0&0&0&0&-d_{22}\\-d_{22}&d_{22}&0&0&0&0\\0&0&0&0&0&0\end{pmatrix}。 \quad (18)$$

把(17)、(18)代入(16)并对晶体长度积分，得到：

$$\begin{cases}|P_x|^2=\dfrac{1}{4}d_{22}^2(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2+\Omega)\\|P_y|^2=\dfrac{1}{4}d_{22}^2(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2-\Omega)\\|P_z|^2=0\end{cases} \quad (19)$$

或

$$|\boldsymbol{P}|^2=\frac{1}{4}d_{22}^2(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2) \quad (20)$$

这个结果与(10)式一致。

2) 6对称晶体：

$$\overleftrightarrow{d}=\begin{pmatrix}d_{11}&-d_{11}&0&0&0&d_{22}\\-d_{22}&d_{22}&0&0&0&-d_{11}\\0&0&0&0&0&0\end{pmatrix} \quad (21)$$

同上方法，得：

$$|\boldsymbol{P}|^2=\frac{1}{2}(d_{11}+d_{22})^2(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2) \quad (22)$$

3) 32对称晶体

$$\overleftrightarrow{d}=\begin{pmatrix}d_{11}&-d_{11}&0&d_{14}&0&0\\0&0&0&0&-d_{14}&d_{11}\\0&0&0&0&0&0\end{pmatrix} \quad (23)$$

则得：

$$|\boldsymbol{P}|^2=\frac{1}{4}d_{11}(E_0^{\omega})^4L^2(S_1+S_2) \quad (24)$$

所有这些结果都与(10)一致。

五、讨　论

要得到三节中所说的半位相匹配，须按不同类型的晶体采用不同方法。

1) 具有双折射的旋光晶体，例如 $AgGaS_2$、$CuGaS_2$ 以及 $CuInS_2$ 等($A^{I}B^{III}C_2^{VI}$ 系晶体)[5~7]。这类晶体可采用一般非旋光双折射晶体的位相匹配方法(角度匹配或温度匹配方法)。但不要求做到 $(n^{2\omega}-n^{\omega})=0$；而是使：

$$(n^{2\omega}-n^{\omega})=|[(n_R^{2\omega}-n_R^{\omega})-(n_L^{2\omega}-n_L^{\omega})]| \tag{25}$$

由于已知的绝大多数晶体，其$(n^{2\omega}-n^{\omega})$都比$|[(n_R^{2\omega}-n_R^{\omega})-(n_L^{2\omega}-n_L^{\omega})]|$大。因此，用上述办法总可以使(25)得到实现，从而得到相匹配。也可以用上述方法做到使(25)近于成立，然后用加磁场改变(25)右边项，以达更精确匹配。

2) 非双折射的旋光晶体：对这类晶体，我们无法调整$(n^{2\omega}-n^{\omega})$的值，但可以选择一些晶体，使得(25)中两边的值尽量靠近，然后加磁场以增加右边项的绝对值，变化磁场使(25)得到满足。不幸的是现在所知的最好的自然旋光性晶体(如石英等)，其单位长度旋转的角度最大只不过是10^2 rad/cm 数量级，还远小于匹配要求。而要使(25)式近于满足，自然旋光率要大于10^3 rad/cm。而要把10^2 rad/cm 提高一个数量级，需加非常大的磁场强度。故此类晶体难以得到采用，必须寻找更大的自然旋光率的晶体。目前在液晶中的某些种类，如胆固醇安息酸盐等可超过10^3 rad/cm，相信今后还会发现一些其它有希望的晶体。

当然，各种晶体都有其透明窗口，例如$AgGaS_2$等的透明窗口是从 0.8 μm 到 12 μm。它们可望做为这个波段的倍频材料，从而弥补了正常倍频晶体所受的透明窗口限制，把倍频器件伸到远红外。除此之外，由于旋光晶体倍频后的输出光的偏振方向随晶体长度变化，于是用旋光晶体做为倍频材料，可按要求设计晶体长度，使倍频光的偏振方向与泵浦光的偏振方向成某个角度，如 0°、45° 或 90° 等。即不但起倍频作用，也可起转动作用。当然，对旋光晶体的 SHG 研究，不单是应用上的兴趣，而且也具有理论上的兴趣[8]。

六、结　论

在旋光晶体中，要实现 SHG 的完全位相匹配是不可能的，但在一定条件下，即使(12)或(13)式中之一得到满足时，可以实现半位相匹配。当$\overleftrightarrow{d}$分量较大，且有合适的透明窗口时，就有望做为倍频材料。

参　考　文　献

[1] H. Rabin, P. P Bey;. *Phys. Rev.*, 1967, **156**, 1010.

[2] H. J. Simon, N. Bloembergen; *Phys. Rev.*, 1968, **171**. 1104.

[3] A. Yariv; *Quant. Electr.*, 1975, 431.

[4] A. Yariv; *Quant. Electr.*, 1975, 422.

[5] M. V. Hobden; *Acta. Crystallogr.*, 1968, **A24**, 676.

[6] B. H. Kasper, J. H. Mcfee;*IEEE J. Quant. Electr.*, 1971, **QE-7**, 563.

[7] E. K. Belove *et al.*; *Inorg. Mater.*, 1967, **3**, 543.

[8] A. Yariv, J. F. Lotspeich; *J. Opt. Soc. Am.*, 1982, **72**, 273.

(上接第423页)

图 4(*a*)为 $N=2$, $N'=3$; $M'=0$, $M=1$, 即放大了$(N+N')(M+M')=5$倍；(*b*)为$(M'+M')(N+N')=(2+2)(2+3)=10$倍；(*c*)为$N'=4$, $N=5$; $M=M'=1$，放大了18倍，(*d*)～(*h*)分别为 26×、36×、52×、78×、104×。(*h*)的衍射级次选择为$N'=6$、$N=7$; $M=M'=4$。$(N'+N)(M+M')=104$。由图4(*h*)可看出放大104倍的干涉图样仍可看到有规律的条纹。未受随机噪声的严重影响，有较高的信噪比。这主要是由于只用两步全息记录，大大减少了多步全息带来的随机噪声。实验上如采用高质量的光学系统，如高质量全反射镜及分光镜，仔细校对光路可望得到更高倍的低噪声位相差放大。

参　考　文　献

[1] O. Bryngolohl; *JOSA*, 1968, **59**, 142.

[2] K. Matsumoto *et al.*; *JOSA*, 1970, **60**, 30.

[3] S. Toyooka;*Appl. Opt.*, 1974, **13**, No. 8, 2014.

[4] K. Matsuda *et al.*; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, No. 16, 2763.