分形超晶格非线性光子晶体中的准相位匹配和切伦 科夫辐射谐频

马博琴 田少华 王 也

中国传媒大学理工学部理学院,北京100024

摘要 采用外加高压脉冲电场的方法制备了二维谢尔宾斯基分形超晶格结构铌酸锂(LiNbO₃)非线性光子晶体,对晶体中的准相位匹配和切伦科夫辐射谐频等光学特性进行了实验和理论研究。理论推导出了晶体中的准相位匹配 倍频与不同阶次的倒易矢量间的对应关系,与实验结果吻合。对于同一个倒易矢量,可以实现两种波长的准相位 匹配倍频。同时,实现了近红外波段的共线和非共线三倍频输出。理论计算出不同波长下的切伦科夫辐射倍频和 三倍频的辐射角,与实验测量结果相吻合。在特定波长下,切伦科夫辐射谐频光环的辐射角存在最小值。同一个 波长下,切伦科夫辐射三倍频的辐射角总是大于倍频的辐射角。

关键词 非线性光学;准相位匹配谐频;切伦科夫辐射;非线性光子晶体

中图分类号 0437 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201643.0202007

Quasi-Phase Matching and Čerenkov Radiation Harmonics in Nonlinear Photonic Crystals with Fractal Superlattices

Ma Boqin Tian Shaohua Wang Ye

College of Science, Faculty of Science and Engineering, Communication University of China, Beijing 100024, China

Abstract Lithium niobate (LiNbO₃) nonlinear photonic crystals with Sierpinski fractal superlattices are fabricated successfully using high voltage electric field, and their quasi-phase matching and Čerenkov radiation harmonics are studied theoretically and experimentally. The relationship between the fundamental wavelengths and the order of quasi-phase matching harmonics is gotten theoretically. This result corresponds to the experimental value. For one reciprocal vector, quasi-phase matching second-harmonics of 2 kinds of wavelength can be accomplished. The collinear and non-collinear quasi-phase matching second- and third-harmonics in the near infrared wavebands are observed. The distribution of Čerenkov second- and third-harmonic radiation angles as a function of input fundamental wavelength are calculated and the results agree with the experiments. Čerenkov radiation angles reach the minimum at some certain wavelengths. Čerenkov third-harmonic radiation angles are larger than the second-harmonic ones at the same wavelength.

Key words nonlinear optics; quasi-phase matching harmonics; Čerenkov radiation; nonlinear photonic crystal **OCIS codes** 190.2620; 160.3380; 350.5610

1 引 言

对于普通光学介质而言,因色散效应的存在,折射率随着频率变化而变化,使得倍频波矢大于基频波矢的两倍,即动量不守恒。也就是说,非线性二倍频过程中,存在波矢失配量,不能满足相位匹配条件。准相 位匹配技术通过铁电晶体局部畴反转,改变晶体局部非线性系数的符号,形成倒易矢量来弥补波矢失配,使

收稿日期: 2015-09-05; 收到修改稿日期: 2015-10-22

基金项目:国家自然科学基金(11004175)、中国传媒大学工科规划项目(3132014XNG1411)、"优秀中青年教师培养工程" (YXJS201306)

作者简介:马博琴(1976—),女,博士,副教授,主要从事非线性光子晶体方面的研究。E-mail: maboqin@cuc.edu.cn

得动量守恒条件得以满足,从而实现基频光向谐频光单方向的能量转移¹¹。这些局部畴被反转的晶体称为 非线性光子晶体。其微观结构调制周期多在波长量级,远大于晶格常数,故称为超晶格。分形是由美国曼 德勃·罗特在1975年首次提出,它的组成部分以某种方式与整体相似,或者说,分形的局部与整体具有相似 性¹²。这意味着不管放大或缩小多少倍,它们的图案都在进行数学上的推导和重现。分形超晶格结构的衍 射图样仍具有分形的特征,可提供丰富的倒易矢量分布。铌酸锂(LiNbO₃)晶体有着优良的非线性光学、光 电、双折射等物理特性,以及耐高温、抗腐蚀、易于加工、成本低、不易潮解等优势,因此它有"光学硅"的美 誉。本文将LiNbO₃作为制备二维谢尔宾斯基分形结构非线性光子晶体的源材料,对LiNbO₃晶体中的准相位 匹配和切伦科夫辐射谐频等光学特性进行了实验和理论研究。随着微电子学、光刻技术和高压极化技术等 的发展,人们热衷于非线性光子晶体中的准相位匹配倍频研究,利用不同的倒易矢量可以实现不同阶次的 共线和非共线准相位匹配倍频,此外,还对该晶体中不同波长不同阶次的准相位匹配三倍频进行了研究^[3-4]。

在介质中,当带电粒子速度高于介质中的光速时,它会驱动一种相干光产生,称之为切伦科夫辐射。高 能量激光诞生后,切伦科夫辐射的概念被引入非线性光学领域,形成了非线性切伦科夫辐射。与传统意义 上的切伦科夫辐射应用于粒子探测不同,非线性光学切伦科夫辐射可用于光子的探测。而且,激光束在非 线性光子晶体中传播时,可以通过对晶体超晶格结构的设计对辐射特性进行人为控制。这些有助于光电子 学、新型激光光源的研发,对于发展新型的全波段激光器以及研制多通道的光电子集成器件等都具有重要 的意义。近年来,国内外学者都比较关注准相位匹配晶体中非线性切伦科夫辐射研究,侧重于一维超晶格 结构、二维十重准周期和周期超晶格结构铁电晶体中的辐射光,但是入射激光束的波长比较单一^[5-10]。鉴于 此,本文对二维分形结构LiNbO3非线性光子晶体中的高能量连续可调的激光束作为入射基频光源的切伦科 夫辐射进行研究。

2 晶体结构设计和样品制备

将一个正方形等分为9个小正方形,去掉中心的正方形,所得图形为一级谢尔宾斯基分形结构。将余下的8个小正方形再分别等分为9个更小的正方形,都去掉中心的正方形,所得图形为二级谢尔宾斯基分形结构。这个过程不断进行下去,经过无数次操作,得到1个极限图形,称为谢尔宾斯基地毯。将谢尔宾斯基地毯。将谢尔宾斯基地毯。中的正方形都替换成了圆形,且圆形直径恰好等于正方形边长,主要考虑到以下两个方面原因:其一,利用外加高压脉冲电场的方法制备铌酸锂非线性光子晶体前,需要在LiNbO3晶体表面涂抹光刻胶。通过紫外曝光将部分区域的光刻胶去掉,无光刻胶覆盖的这些区域是将来需要极化反转所对应的区域,即电极区域。为了极化出均匀的图案,本文采用圆形区域,因为圆形结构所形成的电场分布比方形结构所形成的电场分布要均匀。其二,LiNbO3晶体为3m对称分布,在极化-z面容易出现正六边形结构。与正方形相比,正六边形结构与圆形更加相近。

考虑到外加高压电场极化的畴连接、掩膜板加工的数据量,以及激光波长范围等关键因素,本文中二维 谢尔宾斯基分形的阶数为4。之后,将该图形进行周期性重复至需要的大小。基于外加高压电场极化实验 中的极化畴扩展,将掩膜板参数设置如下:从最大圆到最小圆的直径分别为100、30、10、3 µm,最小圆之间的 间距为13.64 µm。图1为极化所得的谢尔宾斯基分形LiNbO3非线性光子晶体的+z表面的显微图。可见,整 个二维平面内极化反转畴与预期结果吻合,4级分形结构中的圆形清晰可见,极化晶体质量很好。LiNbO3非 线性光子晶体样品的长宽均为0.8 cm,其厚度为0.5 mm。对于下文中的准相位匹配和切伦科夫辐射谐频,



图 1 谢尔宾斯基分形超晶格结构 LiNbO3非线性光子晶体 Fig.1 LiNbO3 nonlinear photonic crystal with Sierpinski fractal superlattice

0202007-2

分别采用了晶体样品1和2进行测量,实验测量都在室温下进行。实验测量中无特殊说明时,入射基频光束均由皮秒光参量放大器产生,其脉宽和重复频率分别为21 ps和1 kHz。

3 准相位匹配谐频

分形结构具有自相似性的特点,在分形结构中任意小的尺度之下,总有复杂的细节。这使得二维分形 超晶格结构的倒空间中,倒易矢量的分布非常丰富。高级次的分形可以获得更小的倒易矢量,且基于逐级 倍增的特点,利用较小倒易矢量的组合可以实现高效的原本需要较大倒易矢量进行的准相位匹配非线性谐 频过程。激光束沿晶体的x或y轴方向垂直入射至晶体表面,其偏振分向与晶体的z轴相平行。

图 2 是分形超晶格结构倒空间中的准相位匹配倍频示意图。其中 a 为倒空间中的基本倒易矢量,其大小 为 $a=2\pi/13.64=0.461$ (μ m⁻¹)。分形的衍射图中有较强衍射点构成的边长为 a 的正方形的周期分布特性,此外, 在强点之间还分布着间距 $a/3 \cdot 2a/3 \pi a/9 \cdot 2a/9$ 等的衍射弱点,这与二维周期结构衍射分布不同。可知,二维谢 尔宾斯基分形超晶格结构可以提供更加丰富的倒易矢量,由此可以实现不同激光波长的准相位匹配谐频。根 据准相位匹配倍频过程的动量守恒条件 $2k_1 + G = k_2$,其中 $k_1 \pi k_2$ 分别为基频和倍频波矢, G 为倒易矢量。当 $k_1 = G$ 方向相同时,该倍频过程称为共线准相位匹配倍频,否则,称为非共线准相位匹配倍频。



图2 分形超晶格结构倒空间中的准相位匹配倍频示意图

Fig.2 Illustration of quasi-phase matching second-harmonics in the reciprocal space of fractal superlattice

如图 3 所示为共线准相位匹配倍频过程中基频波长与准相位匹配阶次的关系。利用倒易矢量 a 和 2a,实现了波长为 1350 nm 的一阶准相位匹配倍频和 1064 nm 的二阶准相位匹配倍频的光斑图片。其中,一阶倍频所对应的基频激光束来自光参量振荡器,其脉宽和重复频率分别为 9 ns 和 10 Hz。此外,还观察到了基频波长 1184 nm 和 1155 nm 的准相位匹配倍频,其中所采用的倒易矢量分别为(1+1/9+1/3)a 和(1+2/9+1/3)a。由此可知,倒易矢量(1/9+1/3)a 和(2/9+1/3)a 可以有效地参与准相位匹配倍频过程。由上述动量守恒条件计算可得,对于倒易矢量(1/9+1/3)a,可以实现 2058 nm 和 3743 nm 的倍频输出。对于倒易矢量(2/9+1/3)a,可以实现 1763 nm 和 4716 nm 的倍频输出。对于一种倒易矢量能够实验两种波长的倍频输出,归因于激光在晶体中的折射率与其波长的色散关系。此外,采用倒易矢量 6a,可以实现波长 773 nm 的高阶准相位匹配倍频。

此外,在谢尔宾斯基分形超晶格结构LiNbO3非线性光子晶体中,基于其丰富的倒易矢量分布,还对近红





Fig.3 Relationship between the quasi-phase matching orders and the input fundamental wavelengths during the

quasi-phase matching second-harmonic processes

外长波段(1100~2526 nm)波段的准相位匹配倍频和三倍频进行了实验观测。图4给出了近红外波长 1731、1639、1559、1555 nm的三倍频输出斑图,该三倍频位于可见光波段。其中,对于1731 nm和1559 nm的 基频光波而言,在入射光方向(中心)产生了有效的共线三倍频。对于1639 nm和1555 nm的基波而言,在中 心对称两侧产生了非共线三倍频。



图 4 近红外波段的准相位匹配三倍频过程。 (a) 1731 nm; (b) 1639 nm; (c) 1559 nm; (d) 1555 nm Fig.4 Quasi-phase matching third-harmonics in the near infrared wavebands. (a) 1731 nm; (b) 1639 nm; (c) 1559 nm; (d) 1555 nm

4 切伦科夫辐射

4.1 切伦科夫辐射倍频辐射角

LiNbO₃晶体是负单轴晶体,具有双折射特性。对于寻常光(o光)而言,它在晶体内部的传播速度是各向同性的。而对于非寻常光(e光)而言,具有各向异性,折射率是光波矢与光轴之间夹角的函数。图5为 LiNbO₃晶体中o光球面和e光椭球面波面的剖面图。其中,θ_e是波矢 **k**₁与晶体z轴之间的夹角。采用n_e和n_e 作为o光和e光的主折射率。可得,e光的折射率为



图5 LiNbO3晶体的双折射特性

Fig.5 Birefrigence in LiNbO3 crystal

激光束沿 LiNbO₃非线性光子晶体z轴入射时,在晶体内部,线偏振的基频光束为o光。对于所产生的锥形切伦科夫辐射倍频而言,因晶体的双折射特性,辐射光束将分开为两束,即e光和o光。与两种光束相关的 非线性过程如下:两个寻常波产生寻常倍频波[oo → o],以及两个寻常波产生非寻常倍频波[oo → e]。图6为 切伦科夫辐射谐频产生的示意图。根据非线性切伦科夫辐射的定义可知,在晶体内部的倍频o光和e光波矢 与LiNbO₃晶体z轴之间的夹角分别为

$$\theta_{\circ} = \arccos\left(\frac{v_{\circ}}{v_{1}}\right) = \arccos\left(\frac{n_{1}}{n_{\circ}}\right),$$
(2)

$$\theta_{e} = \arccos\left(\frac{v_{e}}{v_{1}}\right) = \arccos\left[\frac{n_{1}}{n_{e}(\theta_{e})}\right] , \qquad (3)$$

式中 v_1 是晶体中的入射基频速度, v_0 和 v_e 分别为产生的切伦科夫辐射外环(o光)和内环(e光)倍频速度, n_1 是入射基频激光束的折射率,且光束为o光, $n_e(\theta_e)$ 是沿 θ_e 方向传输的倍频e光的折射率。



图6 切伦科夫辐射谐频产生的示意图

Fig.6 Illustration of Čerenkov radiation harmonics

将(1)式代入(3)式可得

$$\theta_{e} = \arccos\left(\sqrt{\frac{n_{1}^{2}n_{o}^{2}}{n_{e}^{2}n_{o}^{2} - n_{e}^{2}n_{1}^{2} + n_{1}^{2}n_{o}^{2}}}\right).$$
(4)

室温(24.5℃)下,LiNbO3晶体中e光和o光的Sellnier色散方程如下^[11]:

$$n_{e}(\lambda) = \sqrt{4.582 + \left(\frac{0.09921}{\lambda^{2} - 0.2109^{2}}\right) - 0.02194 \times \lambda^{2}},$$
(5)

$$n_{o}(\lambda) = \sqrt{4.9048 + \left(\frac{0.11775}{\lambda^2 - 0.21802^2}\right) - 0.027153 \times \lambda^2},$$
(6)

式中A为激光波长。(5)式和(6)式用来计算 e 光和 o 光的主折射率 n_e和 n_o。

根据折射定律,可以获得晶体外部切伦科夫辐射倍频o光和e光波矢与晶体光轴之间的夹角为

$$\boldsymbol{\beta}_{\circ} = \arcsin(n_{\circ}\sin\theta_{\circ}) , \qquad (7)$$

$$\beta_{e} = \arcsin\left(\frac{n_{1}\sin\theta_{e}}{\cos\theta_{e}}\right). \tag{8}$$

利用(2)、(4)、(7)、(8)式,可以计算出不同入射波长下,在晶体内部和外部切伦科夫辐射倍频光o光和e光的切伦科夫辐射角分布,如图7中曲线所示。



图 7 不同入射波长下,切伦科夫辐射倍频光o光和e光的辐射角分布(插图是基频波长 1050 nm下的切伦科夫辐射倍频) Fig.7 Distribution of Čerenkov second-harmonic radiation angles for o and e waves as a function of input fundamental wavelength (The inset is the Čerenkov second-harmonic under input wavelength of 1050 nm.)

图 7 的上部和下部分别对应晶体外部和内部的切伦科夫辐射角。很明显,当入射波长位于 2060~2100 nm 范围内时,切伦科夫辐射可达到最小的辐射角,即存在一个拐点。对于 o 光和 e 光而言,在晶体外部的辐射角 最小可达 24.7°和 23.8°。在小于拐点处波长的波段范围内,随着波长的增加,辐射角逐渐减小。而在大于拐 点处波长的波段范围内,现象相反。同时,还对切伦科夫辐射进行了实验测量,红色方块和绿色圆点分别对 应于 o 光和 e 光倍频光的锥角。可见,理论计算结果与实验测量结果相吻合。图 7 中的插图是基频波长 1050 nm下,观察到的切伦科夫辐射倍频输出,其双环很明显。

4.2 切伦科夫辐射倍频光的强度

考虑到切伦科夫辐射倍频光强与晶体铁电畴的形状有关,由此,该光强可按照下列方程进行准确的计算[®]:

$$I_{2}^{(o,e)}(\varphi) = A \left[d_{eff}^{(o,e)}(\varphi) g(\varphi) L \right]^{2} \left\{ \frac{\sin \left[\left(|G| - \Delta k \right) L/2 \right]}{\left(|G| - \Delta k \right) L/2} \right\}^{2} , \qquad (9)$$

式中A是常数,L是样品的厚度, $\Delta k = k_2 \sin \theta$ 为切伦科夫辐射环形光束的相位失配量, θ 为晶体内部的辐射锥角, k_2 是倍频波矢,G是倒易矢量,g是与G有关的傅里叶系数, d_{eff} 是有效非线性系数, φ 是沿晶体x轴逆时针旋转的方位角。此外,在两种非线性切伦科夫辐射过程中,有效非线性系数为

$$d_{\rm eff}^{(0)}(\varphi) = d_{22}\cos\varphi \quad , \tag{10}$$

$$d_{\rm eff}^{\rm (e)}(\varphi) = d_{22}\cos\theta_{\rm e}\sin\varphi + d_{32}\sin\theta_{\rm e} , \qquad (11)$$

式中对于LiNbO₃而言,*d*₃₂/*d*₂₂=-3.9。当反转畴截面为圆形时,傅里叶谱{g,*G*}由一阶贝塞尔函数表征。本文, 切伦科夫辐射涉及正六边形铁电畴截面,其傅里叶变换函数见文献[12]。随后,将对分形非线性光子晶体中 产生的切伦科夫辐射倍频强度进行测量,与理论计算进行比较研究。

4.3 切伦科夫辐射三倍频辐射角

对切伦科夫辐射三倍频的辐射角进行理论预测,结果如图8中虚线所示。当入射波长为1500 nm时,对于 o 光和 e 光而言,在晶体外部的辐射角分别为49.3°和46.8°。该结果与文献[13]中的实验结果48.61°和45.75°基本吻合。这源于切伦科夫辐射角,与晶体超晶格结构无关^[13]。



图 8 不同入射波长下,切伦科夫辐射三倍频光 o 光和 e 光的切伦科夫辐射角分布

Fig.8 Distribution of Čerenkov third-harmonic radiation angles for 0 and e waves as a function of input fundamental wavelength

将切伦科夫辐射倍频和三倍频的辐射角进行比较,结果如图8中实线和虚线所示。可见,切伦科夫辐射三 倍频的辐射角总是大于倍频的辐射角。但是,随着入射基频波长的增加,倍频和三倍频辐射角的差距越来越 小。当入射基频波长为1200 nm时,晶体内部的切伦科夫倍频和三倍频辐射角相差9°,晶体外部辐射角之差约 为40°。当入射基频波长为4400 nm时,晶体内部的切伦科夫倍频和三倍频辐射角相差1.5°,晶体外部辐射角 之差约为7°。这意味着,随着入射波长的增加,切伦科夫辐射倍频锥形光束与三倍频光束逐渐靠近。

5 结 论

对LiNbO3非线性光子晶体中的非线性切伦科夫辐射和准相位匹配谐频进行了理论和实验研究。理论 计算出了不同波长下的切伦科夫辐射倍频和三倍频的辐射角,与实验测量结果相吻合。入射波长位于 2060~2100 nm范围内时,晶体内外的o或e光切伦科夫倍频的辐射角存在最小值。同一个波长下,切伦科夫 辐射三倍频的辐射角总是大于倍频的辐射角。此外,对该晶体中的准相位匹配倍频与不同阶次的倒易矢量 进行了理论推导,可利用同一个倒易矢量,实现两种波长的准相位匹配倍频。在近红外波段实现了共线和 非共线准相位匹配三倍频的有效输出。

参考文献

- 1 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. Physical Review, 1962, 127(6): 1918–1939.
- 2 Mandelbrot B. Fractals: Form, Chance and Dimension[M]. San Francisco: WH Freeman, 1977.
- 3 Zhang Yuantao, Qu Qiuzhi, Qian Jun, *et al.*. Thermal effect analysis of 1560 nm laser frequency doubling in a PPLN crystal[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(7): 0708002.

张远涛, 屈求智, 钱 军, 等. PPLN 晶体 1560 nm 激光倍频过程的热效应分析[J]. 中国激光, 2015, 42(7): 0708002.

4 Wang Hao, Hui Yongling, Jiang Menghua, *et al.*. Research on preparation of quasi-phase-matched GaAs and pulsed CO₂ laser frequency doubling[J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(10): 1006001.

王 吴, 惠勇凌, 姜梦华, 等. 准位相匹配砷化镓晶体制备工艺及脉冲 CO.激光倍频研究[J]. 中国激光, 2014, 41(10): 1006001.

- 5 Sheng Yan, Roppo Vito, Ren Mingliang, *et al.*. Multi-directional Čerenkov second harmonic generation in two-dimensional nonlinear photonic crystal[J]. Optics Express, 2012, 20(4): 3948-3953.
- 6 Zhao Xiaohui, Zheng Yuanlin, Ren Huaijin, *et al.*. Cherenkov second-harmonic Talbot effect in one-dimension nonlinear photonic crystal [J]. Optics Letters, 2014, 39(20): 5885-5887.
- 7 Ayoub Mousa, Roedig Philip, Imbrock Jorg, *et al.*. Cascaded Čerenkov third-harmonic generation in random quadratic media[J]. Applied Physics Letters, 2011, 99(24): 241109.
- 8 Ren Huaijin, Deng Xuewei, Zheng Yuanlin, *et al.*. Nonlinear Cherenkov radiation in an anomalous dispersive medium[J]. Physical Review Letters, 2012, 108(22): 223901.
- 9 Saltiel Solomon Mois, Sheng Yan, Voloch-Bloch Noa, et al.. Čerenkov type second-harmonic generation in two-dimensional nonlinear photonic structures[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2009, 45(11): 1465-1472.
- 10 Zhang Y, Gao Z D, Qi Z, et al.. Nonlinear Čerenkov radiation in nonlinear photonic crystal waveguides[J]. Physical Review Letters, 2008, 100(16): 163904.
- 11 Edwards G J, Lawrence M. A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate[J]. Optical and Quantum Electronics, 1984, 16(4): 373-375.
- 12 P Ferraro, S Grilli, P De Natale. Ferroelectric Crystals for Photonic Applications[M]. Berlin Heidelberg: Springer Verlag, 2009: 259-284.
- 13 Sheng Yan, Wang Wenjie, Shiloh Roy, *et al.*. Čerenkov third-harmonic generation in $\chi^{(2)}$ nonlinear photonic crystal[J]. Applied Physics Letters, 2011, 98(24): 241114.

栏目编辑:史 敏